

Spallative ablation: from metals to dielectrics and from infrared to X-ray lasers

S.I. Anisimov, N.A. Inogamov, Yu.V. Petrov, V.A. Khokhlov,
V.V. Zhakhovskii, M.B. Agranat, S.I. Ashitkov,
A.Ya. Faenov, I.Yu. Skobelev, T.A. Pikuz, V.E. Fortov,
K. Nishihara, Y. Kato, M. Tanaka, M. Kishimoto, M. Ishino,
M. Nishikino, Y. Fukuda, S.V. Bulanov, T. Kawachi

(1) Landau Institute for Theoretical Physics, Chernogolovka

(2) Joint Institute for High Temperatures, Moscow

(3) Kansai Photon Science Institute, JAEA, Kyoto, Japan

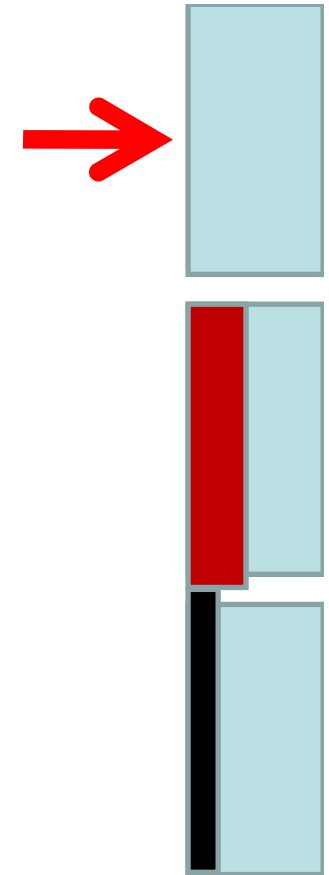
(4) Institute of Laser Engineering, Osaka, Japan

*(5) The Graduate School for the Creation of New Photonics
Industries, Hamamatsu, Shizuoka, Japan*

Лазерное воздействие на мишень, унос вещества (=абляция), два основных механизма абляции:

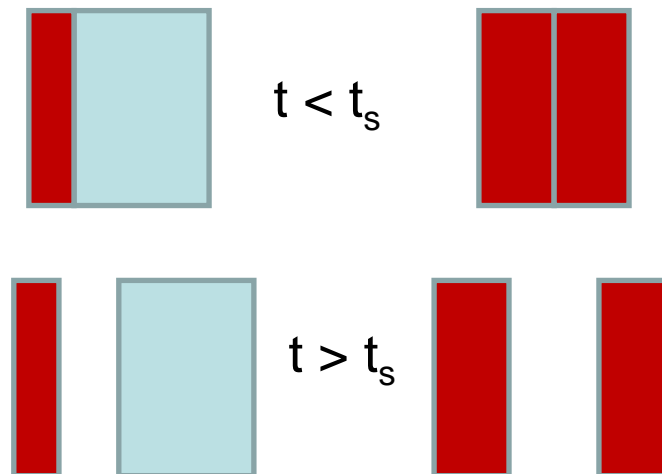
испарительный и откольный

(предложен в ИТФ им. Л.Д. Ландау десять лет назад)



- Нагрев, испарение, отток испаренного вещества
- Испарительная абляция имеет место в случае длинных импульсов, когда продолжительность нагрева превышает звуковое время $t_s = d_T / c_s$, d_T -толщина прогретого слоя (выделен красным), c_s -скорость звука. Красным выделено нагретое вещество у поверхности, черным – то, что испарилось = унесенное вещество

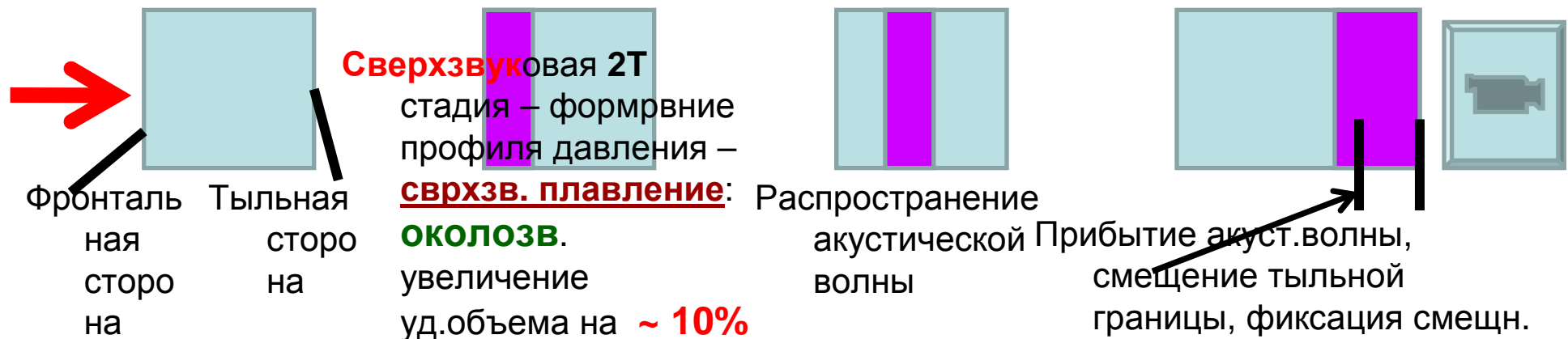
- Короткий импульс \rightarrow быстрый нагрев за время, которое короче t_s .
- Давление в нагретом веществе повышается.
- За счет этого давления нагретый слой отрывается от мишени или - в случае слоя – слой разрывается.
- В этом состоит откольная абляция.



Два новых направления работы

(по сравн. с докладом на семинаре ИТФ в апреле 2009)

- Во-первых, оказывается, что режим с откольной абляцией является основным для XRL (в частности, для XFEL).
 - XFEL = X-ray Free Electron Laser, XRL = X-Ray Laser
-
- Во-вторых, была предложена и сейчас выполняется программа по акустическому зондированию того, что происходит в слое двухтемпературной ($= 2T$) релаксации. Зондирование заключается в определении реакции тыльной стороны тонкой пленки на облучение с фронтальной стороны. Форма акустической волны зависит от хода $2T$ процессов на $2T$ стадии, когда $T_e > T_i$



(1)Лазер (3)→ (2)вещество/мишень

- **(1) Характеристики лазера:**
 - Длительность τ_L
 - Длина волны
 - Флюенс [Дж/см²]
- **(2) Вещество:**
 - Диэлектрики
 - Полупроводники
 - Металлы
- **(3) Процесс:**
 - Откольная абляция – «универсальность»:
от ИК до Рентгена (лишь бы выполнялось $t_T < t_s$)

Лазеры ИК и видимого диапазонов

- **Характеристики лазера**

- Длительность τ_L : фемто - пикосекунды
- Длина волны: сотни – тысячи нанометров
- Флюенс: порядка 1 [Дж/см²]

- **Вещество**

- Диэлектрики *(не видят ОА – почему? Ответ через страницу)*
- Полупроводники *(видят выраженную ОА)*
- Металлы *(видят выраженную ОА)* (Inogamov, Zhakhovskii, Ashitkov, Khokhlov, Petrov et al., Appl.Surf.Science,2009; Zhakhovskii, Inogamov, Petrov et al., Appl.Surf.Science,2009)

- **Процесс**

- Откольная абляция (= ОА)

VUV/EUV – XRL (примеры через несколько страниц)

- Характеристики лазера
- Длительность τ_L : фемто - пикосекунды
- Длина волны: 1 Ангстрем – десятки нанометров (0.1-10 кэВ)
- Флюенс: порядка 0.01 - 1 [Дж/см²]

- Вещество
- **Диэлектрики** (на сейчас есть пример с LiF: Inogamov, Faenov, Khokhlov, Zhakhovskii et al., Cont.Plasma Phys.,2009; Faenov, Inogamov, Zhakhovskii, Khokhlov et al., Appl.Phys.Lett.,2009)
- **Полупроводники**
- **Металлы** (в настоящее время готовятся исследования по облучению с помощью РЛ металлов и полупроводников в KPSI JAEA, Kioto)

- Процесс
- Откольная абляция

Физика поглощения лазерного излучения

- Металлы, полупроводники, диэлектрики – отсутствие или наличие запрещенной зоны E_g и заполнение зоны проводимости
- Поглощение мягких квантов с энергией $h\nu$ меньше или порядка ширины щели E_g (ИК, видимый свет). Длина поглощения: **металлы** против **пп/д** полупроводников (пп) и диэлектриков (д). В металлах все просто – длина поглощения порядка толщины скин-слоя и мало меняется с началом лазерного воздействия. В пп и д поглощение – это сложный процесс, сопровождающийся оптическим пробоем и «потемнением» = уменьшением длины поглощения.
- Поглощение жестких квантов с энергией, превышающей характерную атомную основного состояния (ВУФ, Рентген). При таких $h\nu$ поглощение проще – нет «потемнения» длина поглощения слабо зависит от состояния электронов на энергиях порядка энергии основного состояния.

Мягкие кванты и пп/д

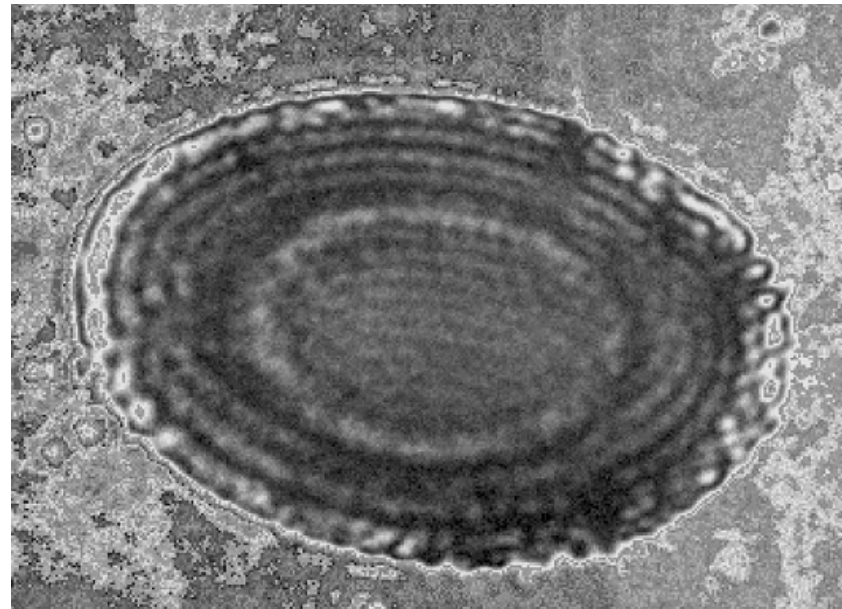
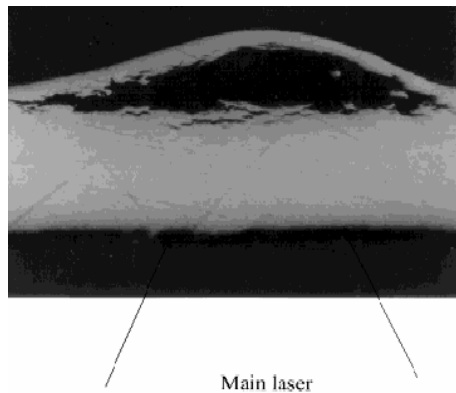
- В металлах в зоне проводимости электронов много – плазменная частота ω_{pl} выше световой частоты ω_L мягких квантов – поглощение идет на толщине скин-слоя 10-30 нм и не меняется во время действия ультракороткого лазерного импульса = УКЛИ (хотя количество электронов в зоне проводимости может возрасти из-за ионизации из валентной зоны, но это не существенно для длины поглощения).
- В пп/д в начале УКЛИ, т.е. при комнатной температуре, в зоне проводимости электронов мало – плазменная частота мала по сравнению с ω_L – длина поглощения велика – мкм и больше.
- В ходе воздействия достаточно мощного УКЛИ на пп/д число электронов проводимости растет из-за комбинации многофотонной/туннельной ионизации и лавины (ионизация электронным ударом). Соответственно растет ω_{pl} . После того, как ω_{pl} переваливает через ω_L , резко снижается длина поглощения – ситуация по поглощению в пп/д начинает быть схожей с металлами («металлизация» пп/д). Снижение длины поглощения выше названо «потемнением».

Мягкие кванты, пп/д, металлизация/потемнение и разница между пп (полупроводники) и д (диэлектрики)

- По мере воздействия УКЛИ энерговклад $E_L(t)$, $0 < t < \tau_L$ в мишень возрастает (возрастание объемной плотности поглощенной энергии в течение УКЛИ). Пусть $E_L = E(t = \infty)$
- Цена металлизации по энерговкладу: сравнение пп и д. В д щель шире, поэтому, чтобы достичь металлизации необходимо вложить больше энергии. При этом теплоемкости, температуры плавления пп и д отличаются мало. Поэтому по достижении металлизации д (диэлектрик) горячее, чем пп (полупроводник).
- Для откольных явлений необходимо, чтобы энерговклад E_L на атом был порядка энергии когезии E_{coh} (теплота сублимации). В д (диэлектриках) по достижении металлизации энерговклад выше, отношение E_L/E_{coh} больше, поэтому откольные явления менее выражены.
- Это ответ на вопрос, почему в пп и металлах экспериментаторы видят ОА, а в д (диэлектриках) – нет. Сказанное означает, что в д (диэлектриках) ОА присутствует, просто зафиксировать это сложнее.

Выраженность ОА (Откольная Абляция): сравнение отклика на УКЛИ у пп и д

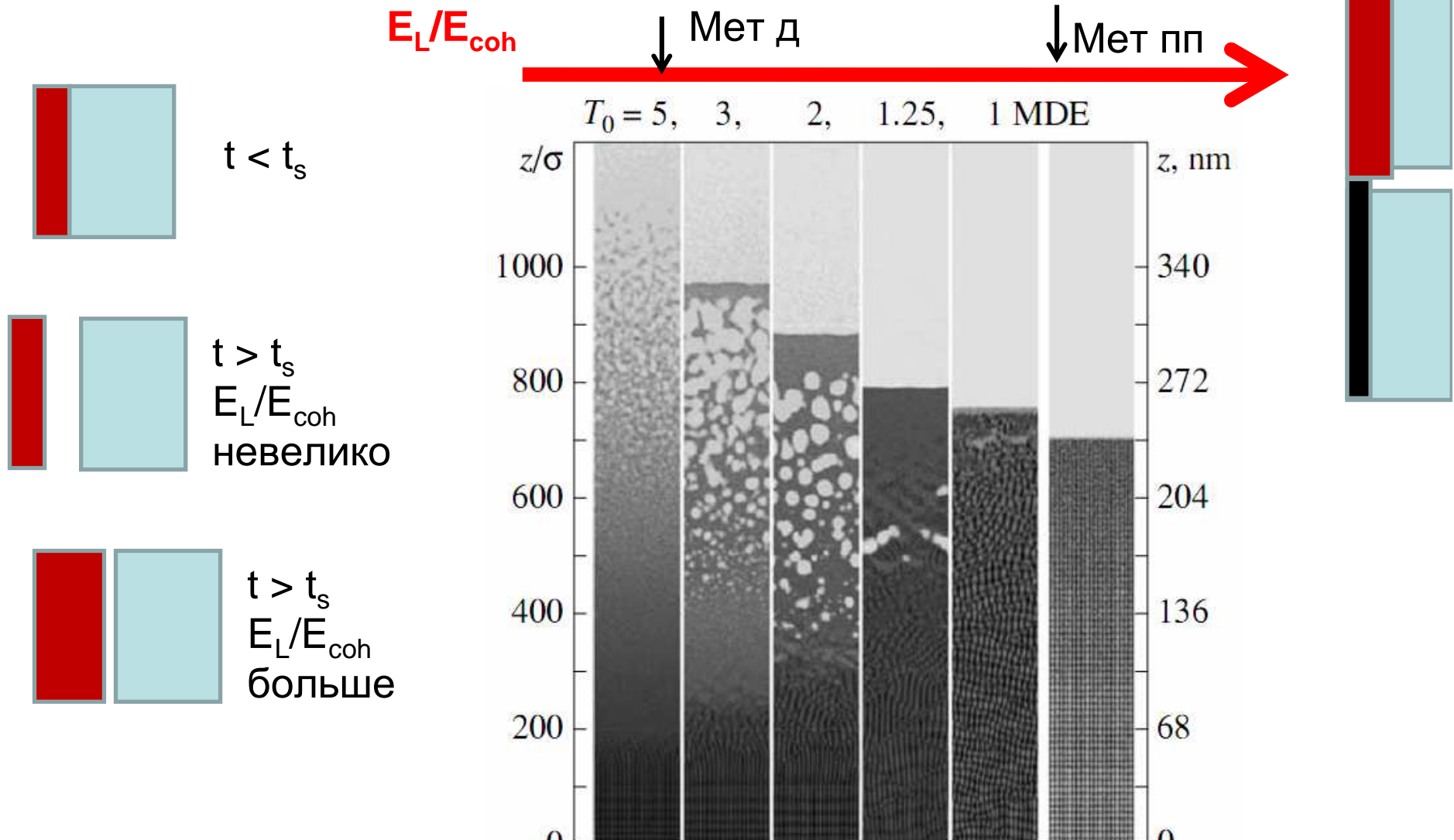
- Порог ОА: ОА – это пороговое явление
- Отсюда существование купола и колец Ньютона при умеренных значениях E_L/E_{coh}



- В д (диэлектрикх) не видят колец
- Замаскированность ОА: внешне ОА при значительных E_L/E_{coh} сходно с испарением. Но при испарении переход в двухфазное состояние происходит потом (после испарения/абляции = удаления с поверхности мишени) вследствие конденсации. Тогда как при ОА фрагментация имеет место в процессе отрыва от мишени. То есть эксперименторы просто не имеют средств на сегодня зафиксировать ОА фрагментацию при воздействии УКЛИ на д (диэлектрики).

Сравнение ОА у пп и д

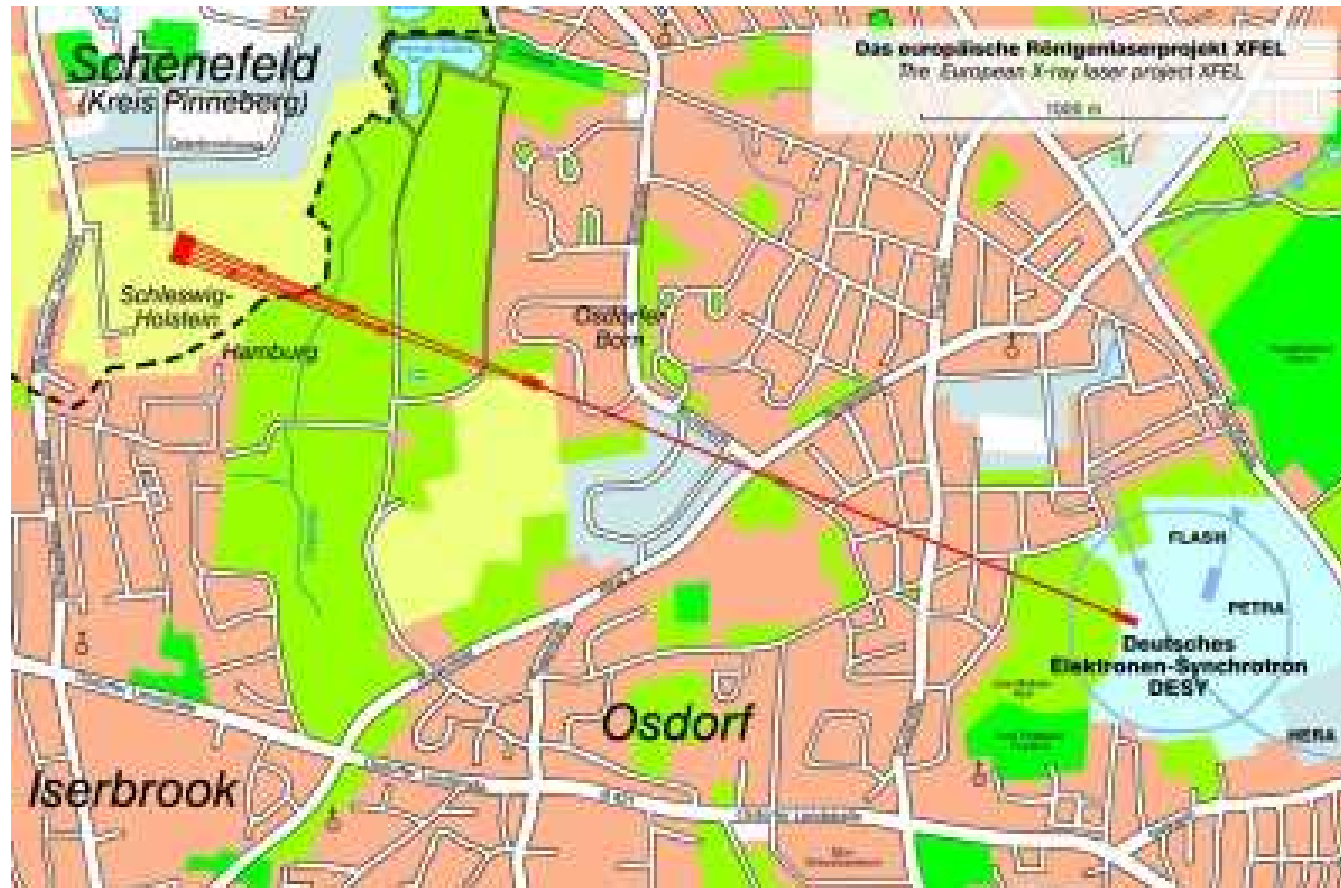
- Конденсация при испарительной абляции
- Фрагментация при ОА =откольной абляции
- Степень фрагментации в зависимости от величины E_L/E_{coh}



XRL

- High order harmonic generation by high intensity femtosecond IR-vis laser pulse
- Transient-collisional scheme
- Oscillations of free relativistic electron beam (X-ray free electron laser, XFEL)

The European X-Ray Laser Project XFEL



The X-ray laser is an 3.4-km-long facility which runs essentially underground and comprises three sites above ground. It will begin on the DESY site in Hamburg-Bahrenfeld and runs mostly underground to the XFEL research site, which is to be erected south of the town of Schenefeld (Pinneberg district, Schleswig-Holstein).

XFEL, Japan



- In x-ray free electron laser (XFEL) application, the analysis of **three-dimensional structure of single bio-molecules** is one of the critical issues.
- Electron density distribution of bio-molecule (three-dimensional structure) is obtained from diffraction pattern through elastic scattering.

Параметры XFEL: абляция попадает на ОА режим

- $\tau_L = 10 - 100$ фс (= УКЛИ)
- Attenuation depth (Al, Si)

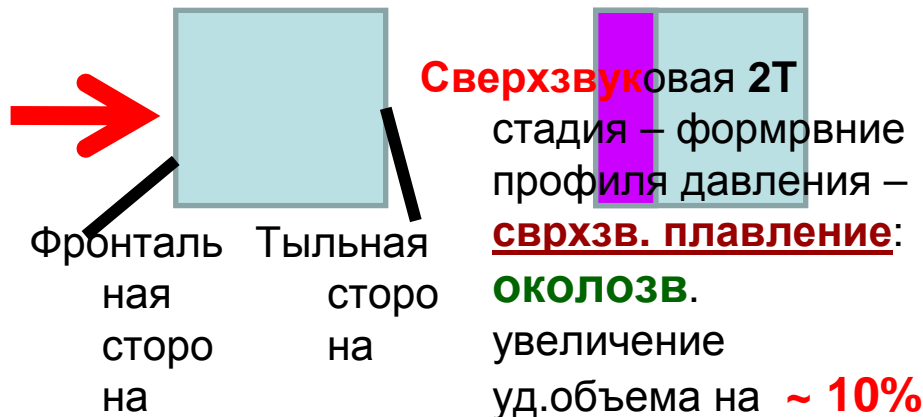
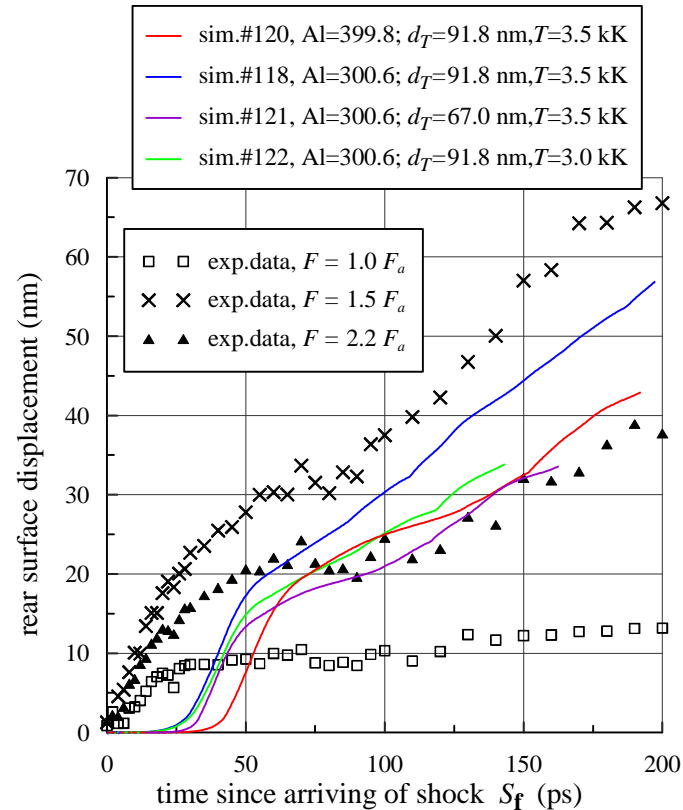
$h\nu, \text{ keV}$	0.1	1	10
$dT, \text{ um}$	0.03	2	100

- Energy of pulse, $N_{h\nu} \sim 10^{12}$, $E_p \sim 1-10$ mJ
- Фокусировка, пятно порядка 100 мкм
- Флюенс порядка 0.1- 1 Дж/см².
- $t_s \sim 0.2$ нс много больше времени термализации ионизованных электронов → абляция УКЛИ XFEL идет через ОА (допорог для жестких квантов 10 кэВ)

Римп-робе микроинтерферометрия

– как способ сверхбыстрого акустического зондирования

- Сверхзвуковая 2Т стадия – формирование профиля давления – сверхзвуковое плавление: околосвуковой процесс увеличения удельного объема расплава (если сравнить с удельным объемом твердой фазы при комнатной температуре, то это увеличение на величину до ~ 10%)



CONTENTS

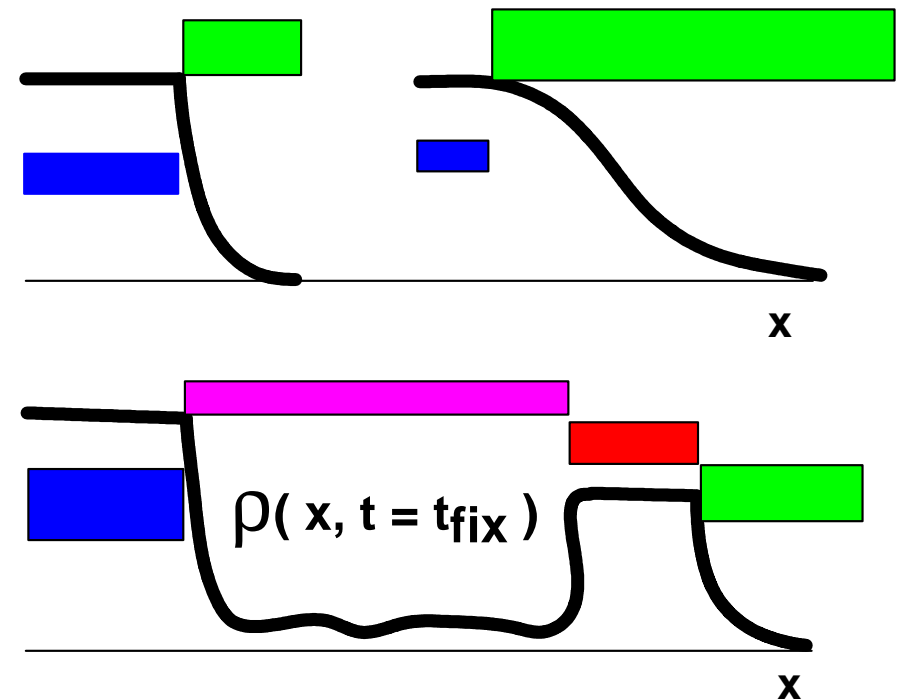
- (1) Spallative ablation (SA) as a separate independent mechanism of ablation. The main competitor is evaporative ablation
- (2) The kernel of SA is: **fast** heating \rightarrow increase of P
 \rightarrow reflection from boundary = creation of $P < 0$ \rightarrow excess of material strength
- SA from IR to X-rays = (3) and (4)
- (3) Classical example: (IR-visible) \leftrightarrow (metals or dielectrics) = pair (laser) \leftrightarrow (matter). But never (IR-visible) \leftrightarrow dielectrics (width of a gap is important)
- (4) New example (= this Report): X-ray \leftrightarrow dielectrics

Evaporative vs Spallative Ablations

- Evaporation : $P_{\text{vapor}} \sim \exp(-E_{\text{coh}}/T)$, E_{coh} ; **single-atom** breakaway (but internal boiling); may be steady (long pulses -continuous evaporation)
- Spallation : energy concentration to begin breakaway is $\sim 0.3 * E_{\text{coh}}$; breakaway of a **piece** (many atoms in this piece) takes place; it can not be steady.

- The coefficient ~ 0.3 corresponds to metals, it may be smaller for such brittle material as LiF.

- Density profiles for evaporation (two profiles above: low and high intensity I cases) and for spallation (the bottom profile). Evaporative profiles are monotonous
- As I increases SpAbl and EvAbl profiles become similar
- Laser light comes from the right side
- EvapAbl is obvious
- While SpallAbl needs some explanations = next page



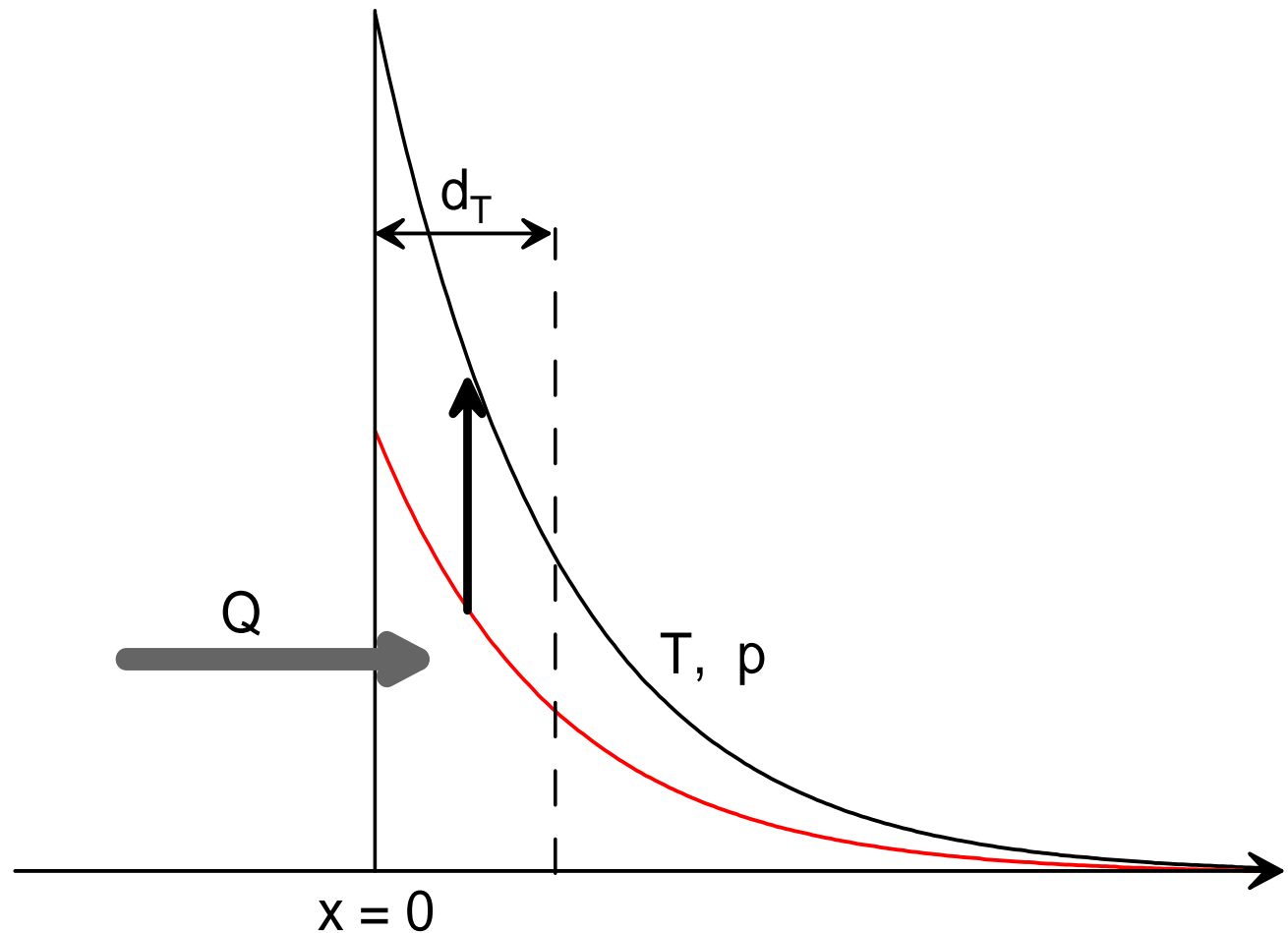
Spallative mechanism: how it works

- **(1)** Temperature rise – it should be fast! How fast? Faster than sonic relaxation
- **(2)** Pressure rise
- **(3)** Acoustic relaxation: decomposition into waves → wave reflection from vacuum boundary of a plane target → reflection creates negative pressures (tensile stress)
- **(4)** Strength of material: ability to resist to stretching and tensile stress. Limiting strength. Sharp ablation threshold

(1), (2) Fast temperature rise.

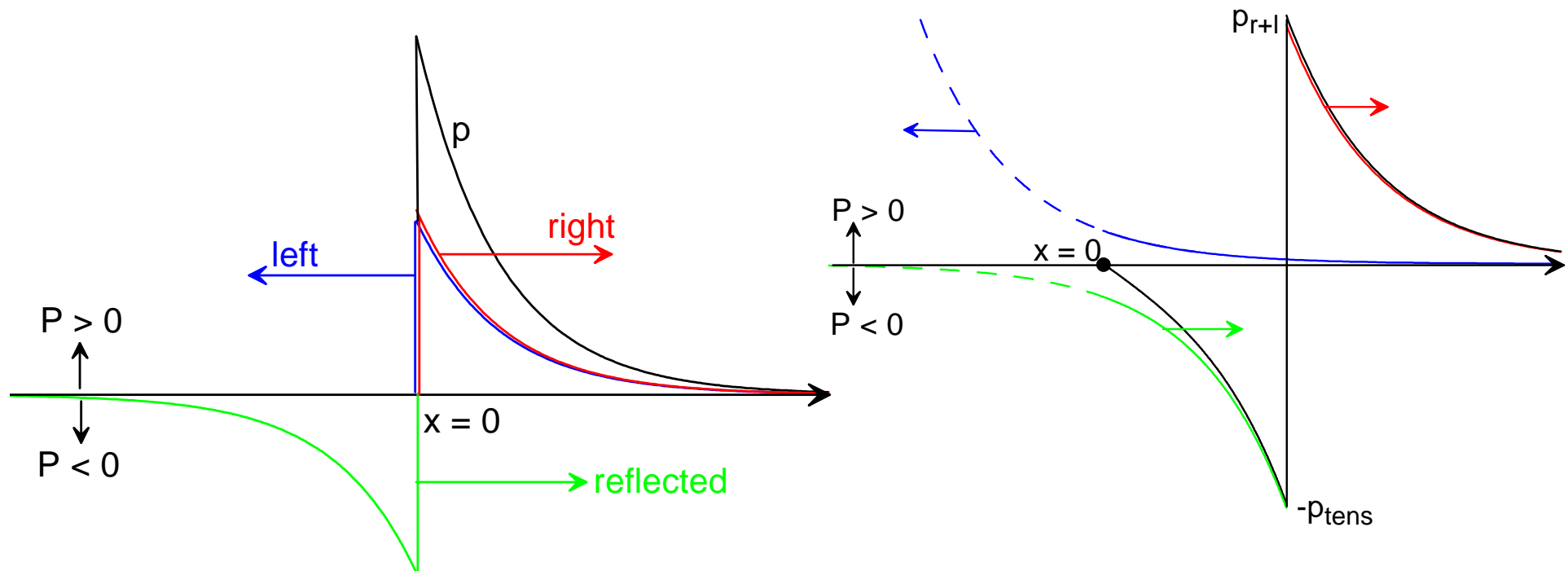
If it is fast then P also increases

- Thickness of the layer heated by laser is d_T
- Sonic relaxation time is $t_s = d_T / c_s$
- Fast means that duration of laser pulse τ_L is smaller than t_s



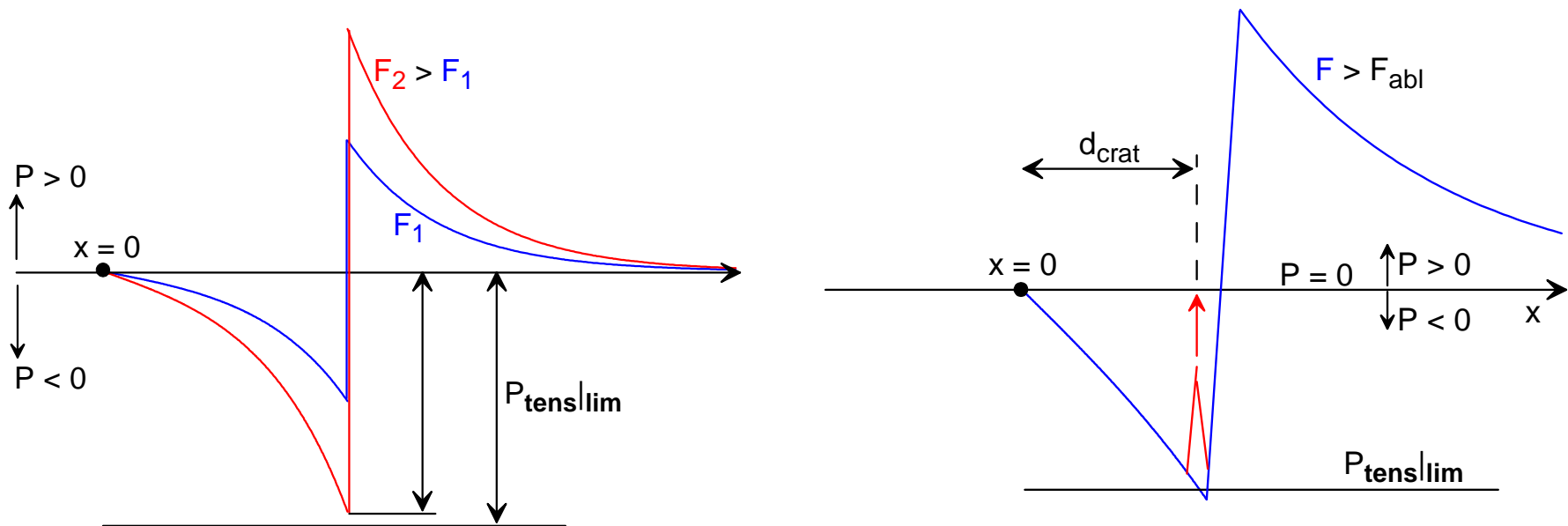
(3) D'Alembert waves

- Acoustic decomposition: solutions of the wave equation $d_{tt}P - c^2 d_{xx}P = 0$: $P = P_+(x+ct) + P_-(x-ct)$
- Reflection from boundary with vacuum: therefore there are three waves: left, right, and reflected



(4) Limiting strength of material

- $P_{\text{tensile}}^{\text{limiting}}$. This is why there is a sharp threshold F_{abl} for spallative ablation
- Rupture takes place at a finite depth under vacuum boundary, therefore a finite piece of removed (=ablated) material appears



Laser \leftrightarrow Matter

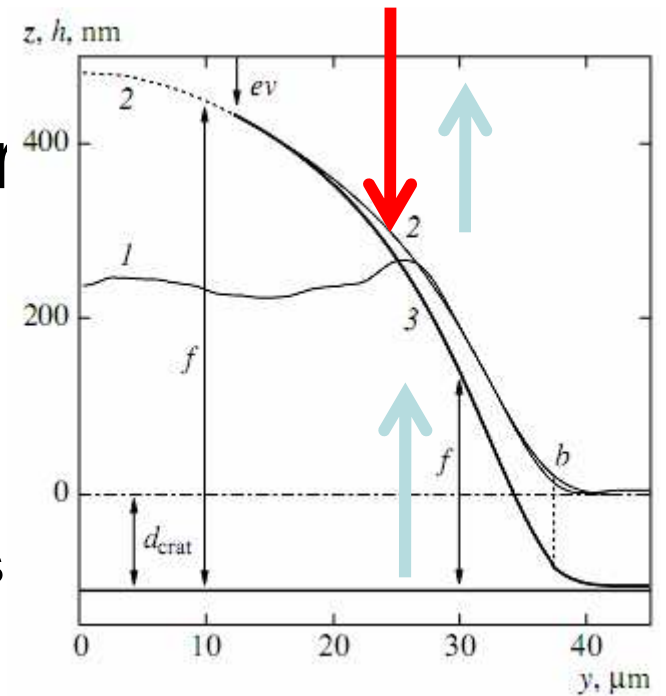
- Laser:
 - Duration
 - Wavelength IR \leftrightarrow **X**
 - Intensity / Fluence
 - The mechanism of spallative ablation (SA) has been introduced previously for IR-visible range lasers with short pulse acting on **metals and semiconductors**
 - This gives remarkable results briefly listed in the next page
 - In this report we for the first time apply spallative ablation (SA) for absolutely different laser / matter pair : **X-rays / dielectrics**
- Matter:
 - **Metals**
 - **Semiconductors**
 - **Dielectrics**

(IR-visible) laser → metals or dielectrics

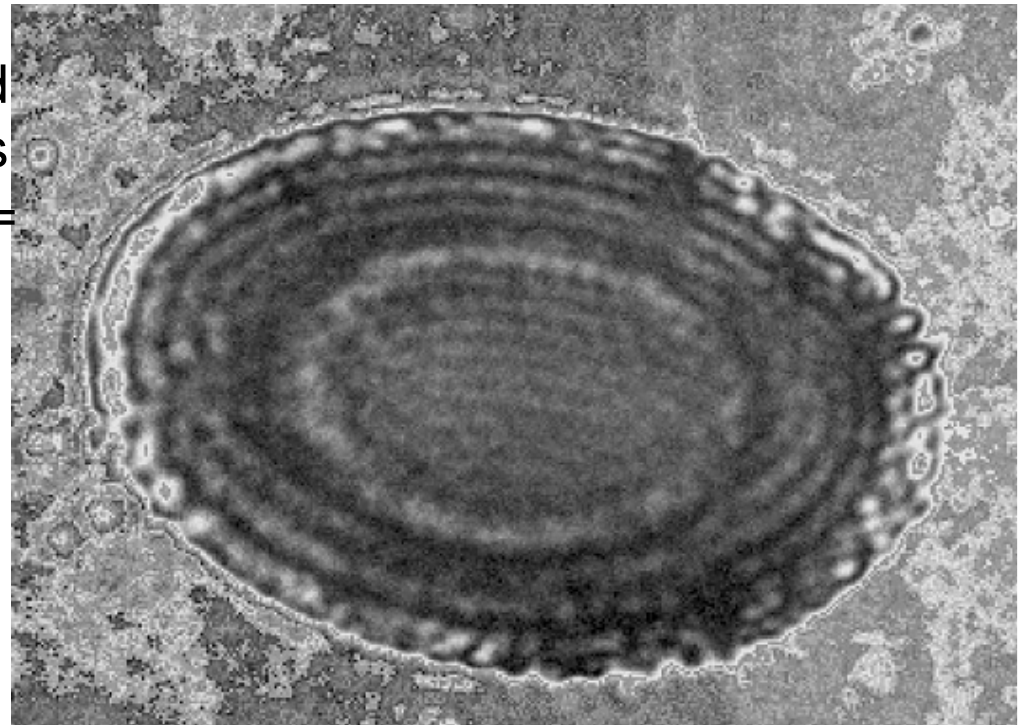
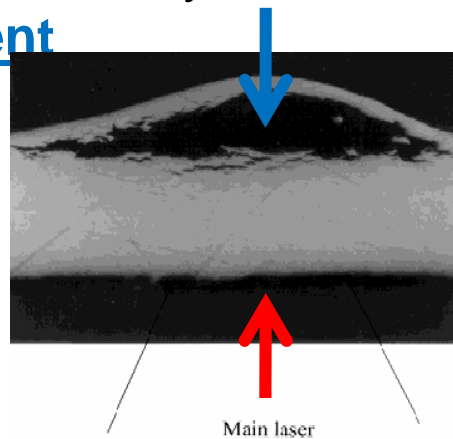
- Introduction of spallative ablation (Inogamov et al., 1999) solves the puzzle of Newton rings observed in pump-probe experiments at all metals and semiconductors (universality of this phenomenon), Sokolowski-Tintev, von der Linde, et al., 1998
- Owing to this mechanism combination of two-temperature physics together with thermodynamic properties of condensed material becomes important
- The mechanism explains existence of sharp ablation threshold
- The laser plume has unusual shape with flying cupola around liquid-vapor mixture. Cupola remains in condensed state. Therefore density profile in the plume is non-monotonous
- Near threshold irradiation forms nanorelief at surface

Example of Newton rings and explanation why they appear

- Interference between the light wave reflected from cupola and the wave reflected from the bottom of the crater creates Newton rings
- This phenomenon is very unusual. Spallative cupolas have been observed in laser experiments (Krasyuk, Pashinin, Fortov et al., 2002; Eliezer et al., 2002)
- But they were at **rear** side of a foil (our cupola is at a frontal side) and they were **thick**. Our cupola wall is thinner (!) then skin-layer ~ 10 nm = it is **transparent**

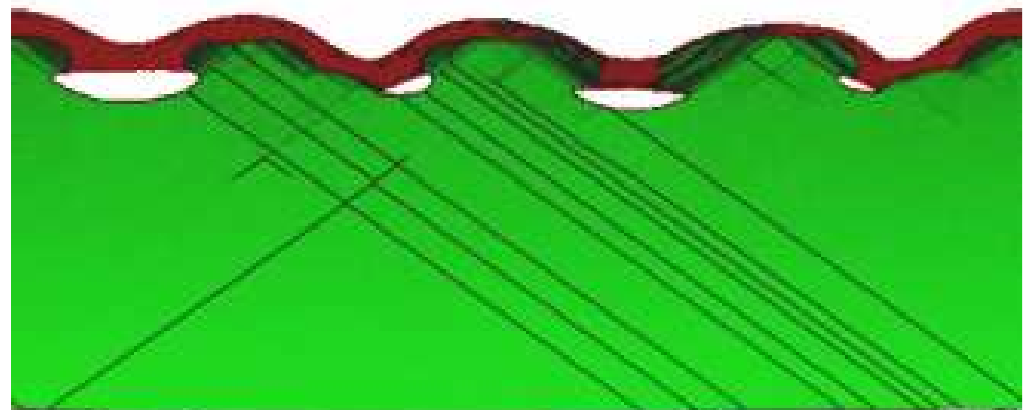
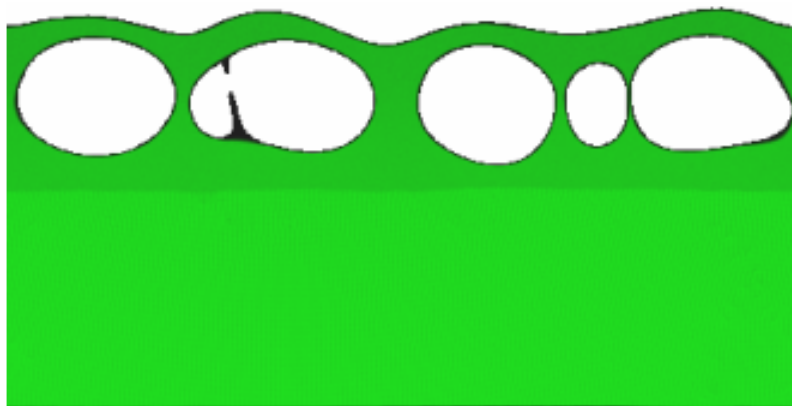


Two pictures here are vertical cross-sections. The third picture is taken from above. The laser spot has an Elliptical shape at a target surface



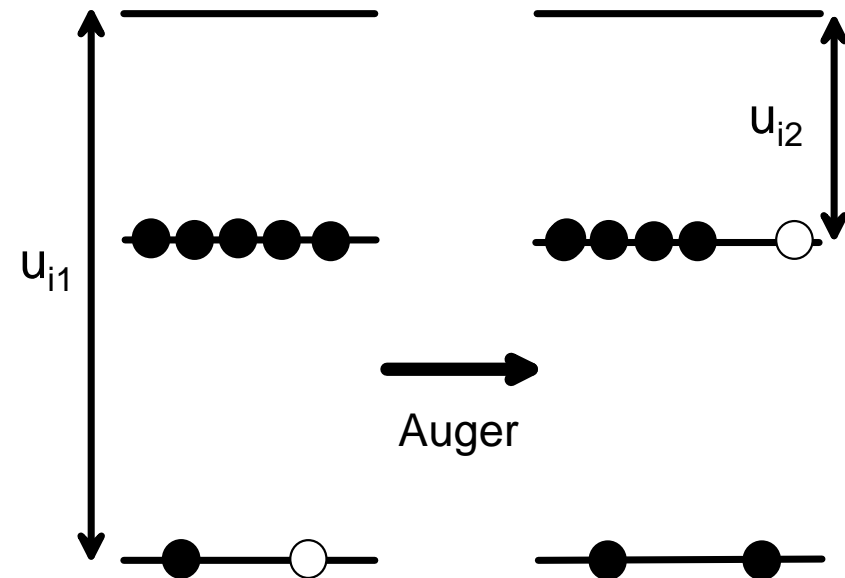
Example of nanorelief

- Near spallative ablation threshold matter can not decide to run-away or continue to be stucked with bulk
- In this case thermal fluctuations become significant – matter passes through metastable stretched state where thermal noise is amplified and enlarged. This produces miniature bumps and wells. Their space scales are $\sim d_T \sim 10\text{-}100\text{ nm}$
- Middle (the left picture) and late (the right picture) stages of formation and freezing of nanorelief. This stage is indeed very late (ns time scale). Difficult long MD simulation is necessary to achieve this stage



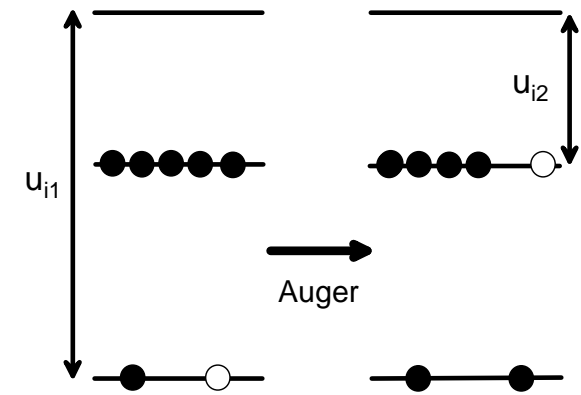
X-rays \rightarrow dielectrics

- Our case is: 90 eV photons, $\tau_L = 7$ ps, Fluence = 5 – 10 mJ/cm²
- Absorption, attenuation length in LiF is 28 nm
- Photoionization, primary ions are single charged (Z=1) Li 1s2s, F 1s² 2s 2p⁵. Z mainly =1 because ion concentration is low ($\sim 1\%$)
- Auger recombination from primary ions to Z=1 ions with a hole at external electronic shell



Kinetics of secondary ions u_{i2}

- Ions gradually disappear as result of cooling of initially hot electron subsystem due to energy transfer to cold atoms



$$dn_e/dt = Q/u_{i2} + \nu_{imp}n_e - \kappa_{rec}n_e^3, \quad Q = (F/(\sqrt{\pi}d_T\tau_L)) \exp(-t^2/\tau_L^2),$$

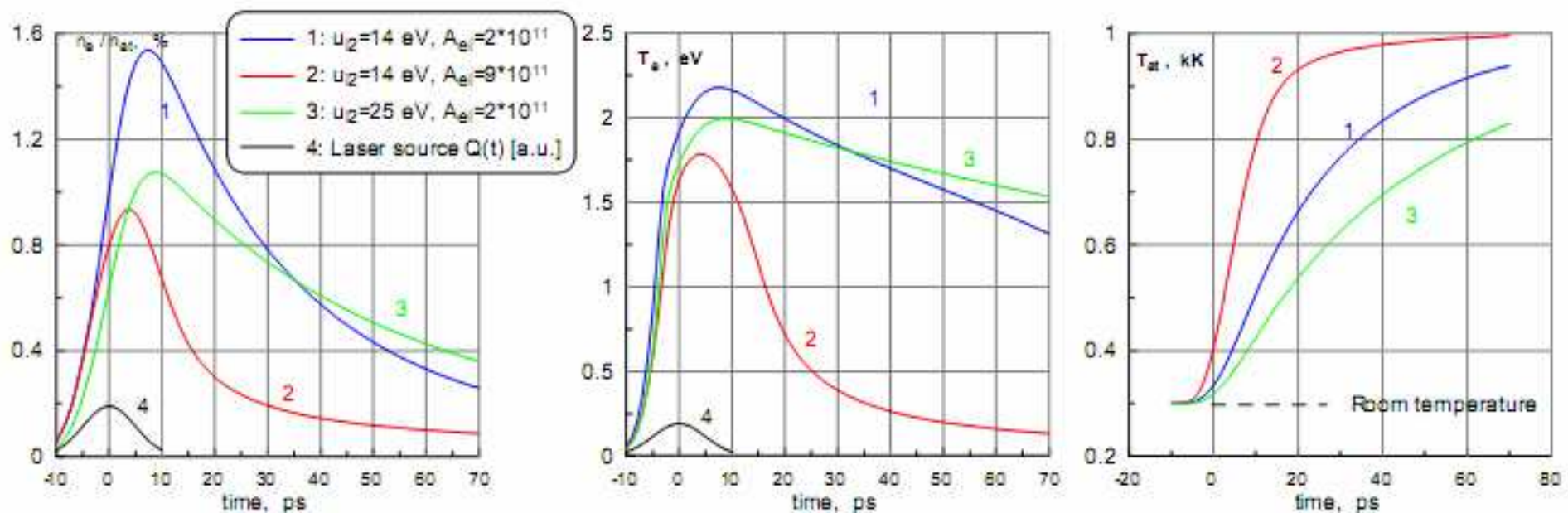
$$dE_e^s/dt = Q - \dot{E}_{ea}, \quad E_e^s = n_e u_{i2} + E_e, \quad E_e = (3/2)n_e T_e,$$

$$CdT_{at}/dt = \dot{E}_{ea}, \quad C \approx 6k_B n_c, \quad n_c \approx 6 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}, \quad \dot{E}_{ea} = AE_e,$$

- Q/u_{i2} is a X-ray source of free electrons, $\nu_{imp} = \langle v^* \sigma \rangle n_{at}$ is a frequency of ionization by an electron impact, κ_{rec} is a coefficient of three body recombination
- E_e^s is total energy of electron subsystem, it is a sum of potential and thermal energies
- \dot{E}_{ea} is an energy exchange rate between atomic and electron subsystems. This is the only term taking away energy of electron subsystem – radiation loses are small at our time scale

Energy transfer from X-ray photons to atoms through electronic subsystem

- Increase and decrease of free electron population: influence of ionic potential u_{i2} is rather small, while influence of the coefficient A in $\dot{E}_{ea} = A \cdot E_e$ is rather significant. The rate \dot{E}_{ea} is connected with almost elastic collisions of the conductivity band electrons with atoms
- This is solution of ODE for $\{n_e, T_e\}$ neglecting acoustic effects



Combination of kinetic, thermal, and sonic effects

$$\rho^{\circ} \frac{\partial}{\partial t} \frac{E_e}{\rho} = \frac{\rho^{\circ}}{\rho} Q - \frac{\rho^{\circ}}{\rho} \dot{E}_{ea} - p_e \frac{\partial u}{\partial x^{\circ}} + \frac{\partial}{\partial x^{\circ}} \left(\frac{\rho \kappa_e}{\rho^{\circ}} \frac{\partial T_e}{\partial x^{\circ}} \right)$$

$$\rho^{\circ} \partial u / \partial t = -\partial p / \partial x^{\circ}$$

$$\rho^{\circ} \partial (E_{at} / \rho) / \partial t = (\rho^{\circ} / \rho) \dot{E}_{ea} - p_{at} \partial u / \partial x^{\circ} + (\partial / \partial x^{\circ}) ((\rho \kappa_{at} / \rho^{\circ}) \partial T_{at} / \partial x^{\circ})$$

- System of hydrodynamic equations: two thermal eqs. for E_e and E_{at} and eq. for momentum
- We neglect here equation for n_e
- Corresponding space homogeneous eq. is $\dot{E}_e = Q - \Lambda E_e$
- We call this eq. {Ee}
- It has main terms: X-ray heating Q and $e \rightarrow a$ cooling

Comparison of {ne,Te} and {Ee} eqs

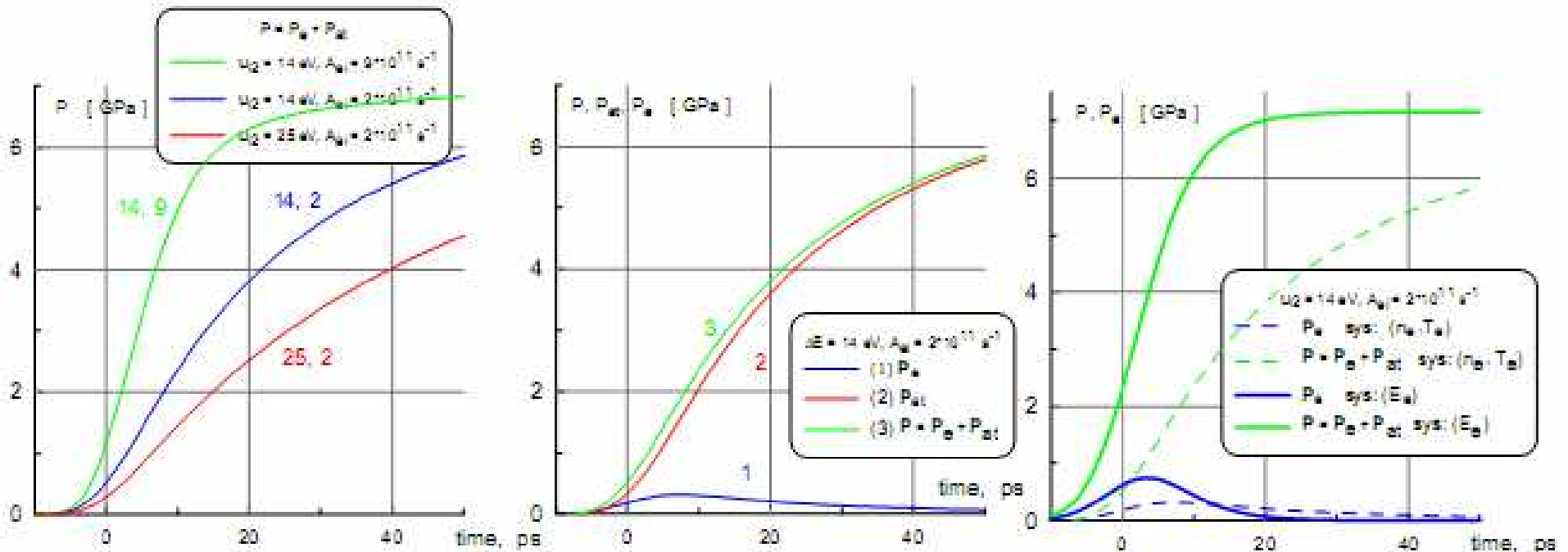
$$dn_e/dt = Q/u_{i2} + \nu_{imp}n_e - \kappa_{rec}n_e^3, \quad Q = (F/(\sqrt{\pi}d_T\tau_L)) \exp(-t^2/\tau_L^2),$$

$$dE_e^s/dt = Q - \dot{E}_{ea}, \quad E_e^s = n_e u_{i2} + E_e, \quad E_e = (3/2)n_e T_e,$$

$$CdT_{at}/dt = \dot{E}_{ea}, \quad C \approx 6k_B n_c, \quad n_c \approx 6 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}, \quad \dot{E}_{ea} = AE_e,$$

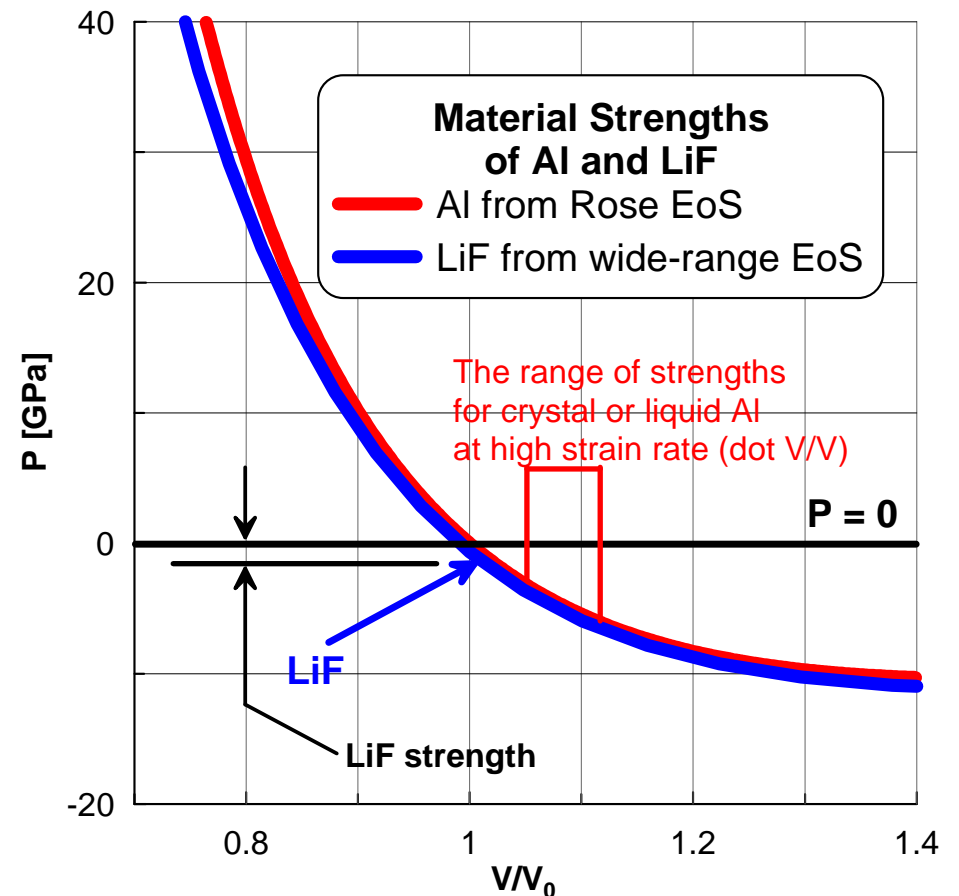
$$\dot{E}_e = Q - AE_e$$

The worst case with small A and therefore slow e-a energy transfer is shown. Conclusion from this comparison is: the {Ee} approach may be used for estimates of pressure amplitudes



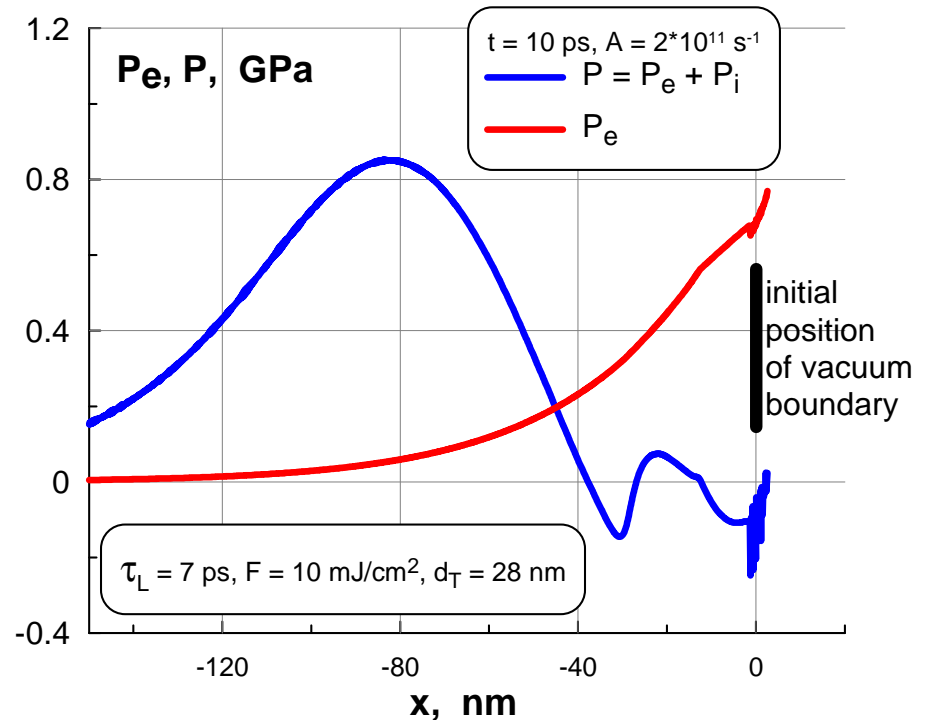
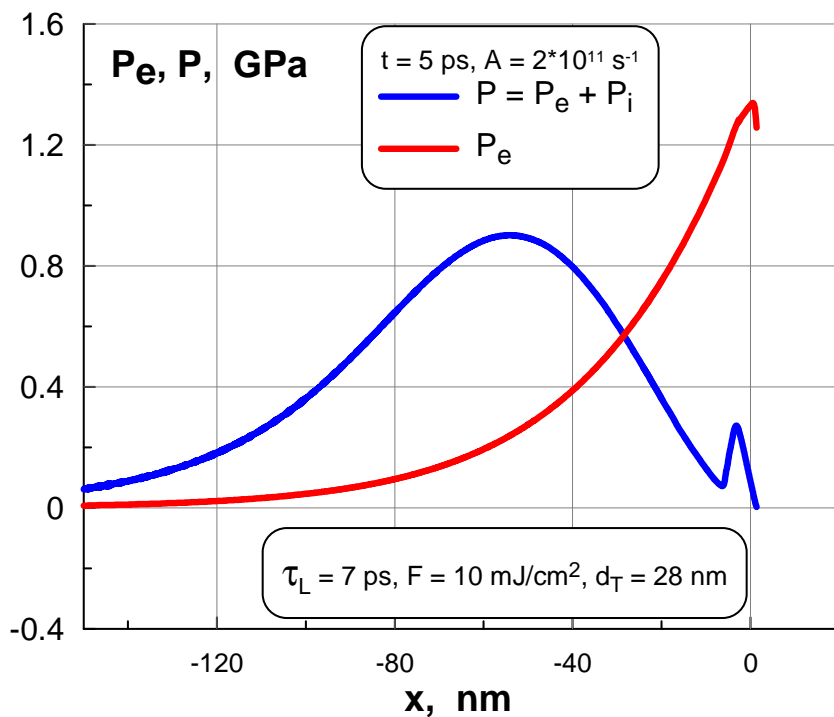
Equation of state (EoS)

- EoS is necessary to simulate energy absorption (heating) together with dynamics
- We compare EoS for LiF and Al from the cite ..\rusbank created by Khishchenko, Lomonosov, Levashov, Fortov, et al.
- In our form of presentation of equations only P_{at} and E_{at} are used
- $P_{at} = G * E_{at}$ and $P_{at}(\rho, T=0)$ are similar for LiF and Al (G=Grueneisen parameter)
- Therefore we use EOS fo Al to simulate LiF
- The only open question concerns the material strength for LiF
- LiF is brittle material –its strength should be small in comparison with metals



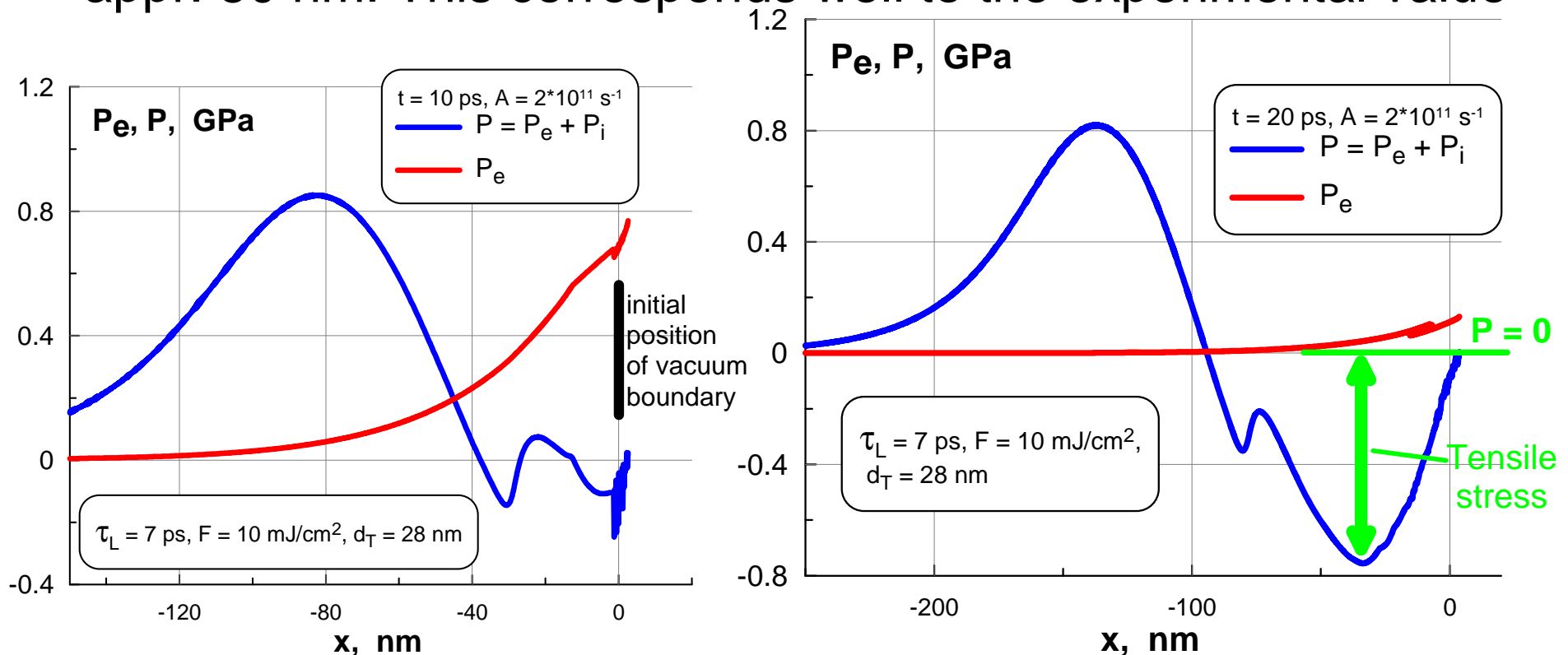
Compression and expansion of X-ray irradiated LiF

- Total pressure P is a sum of partial pressures P_e and P_{at} . $P_e = (2/3) * E_e$ since free electron concentration is small $\sim 1\%$, and therefore degeneracy and non-ideal effects are weak
- The worst value for e-a exchange A is taken
- We see that acoustic relaxation is rather slow – it takes several acoustic times $t_s = d_T / c_s$, $d_T = 28$ nm, $c_s = 6$ km/s



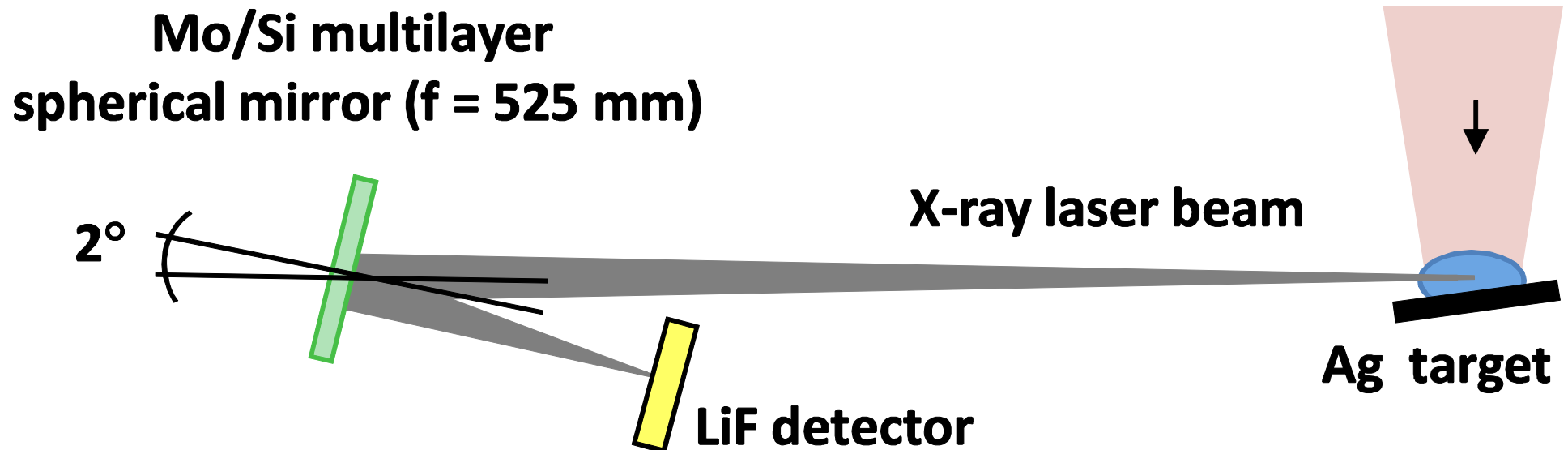
Appearance of tensile stress in irradiated LiF

- We see that acoustic relaxation is rather slow – it takes several acoustic times $t_s = d_T / c_s = 5$ ps
- Therefore formation of negative pressures is significantly **delayed**. Compression wave propagate deep into bulk when the maximum negative P is achieved
- The maximum value of tensile stress is achieved at a depth appr. 50 nm. This corresponds well to the experimental value



Experiments

- Experiments have been performed at the XRL facility at JAEA Kansai Photon Science Institute

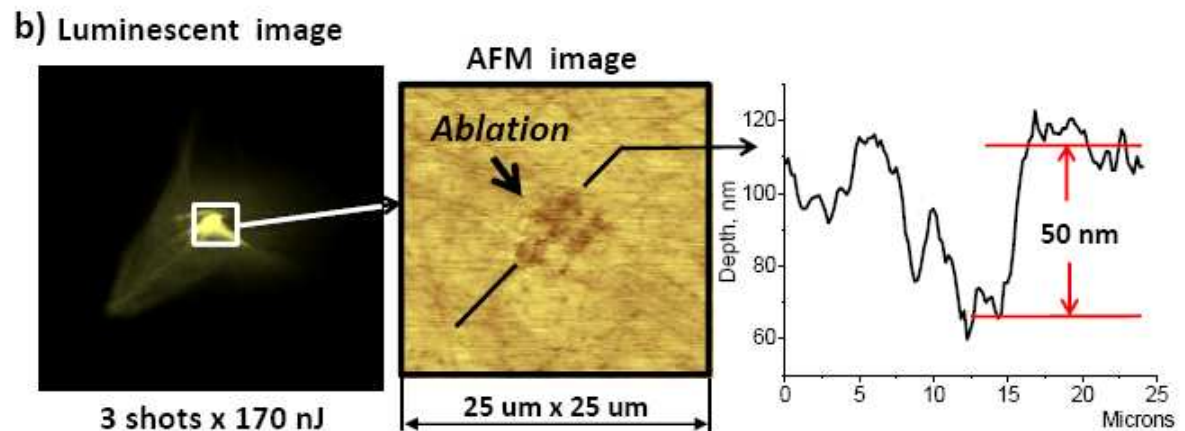
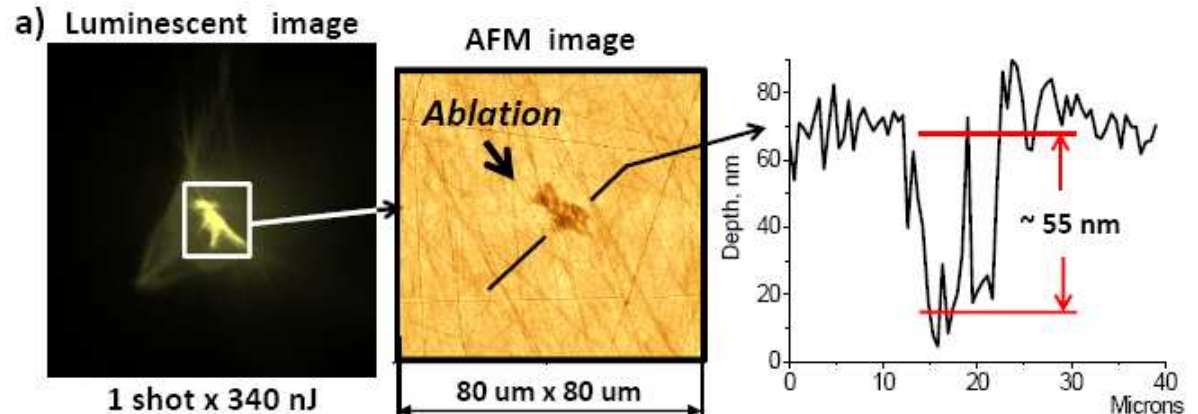


Experimental results

- Measured ablation threshold is surprisingly low! Only 10 mJ/cm². To understand that this is indeed unexpected it is enough to compare this threshold with typical thresholds of several thousands mJ/cm² for dielectrics for IR-vis. lasers (fs-ns duration) and with 100 mJ/cm² threshold for X-ray 1.7 ns laser → duration is important (our XRL has $\tau_L = 7$ ps)
- The crater depth is approximately 50 nm

Experimental technique: how the threshold has been measured

- Very powerful and careful diagnostic tools have been used
- Energy distribution in focal spot has been defined by using the luminescence of stable color centers formed by XRL radiation
- Ablation threshold is extremely low. Theory explains this through “economic” spallative mechanism.
- Simulations show that at the experimental value of F the maximum stretching indeed is achieved at the desired depth 50 nm
- Difference between the single shot vs triple shots exp-s says that defects are accumulated and the material strength of brittle LiF crystal decreases



Conclusion

- Experimentally very low ablation threshold has been found
- Theory explains this as transition from evaporative to spallative ablation