

# Math-Net.Ru

Общероссийский математический портал

Д. С. Поляков, Е. Б. Яковлев, Границы применимости двухтемпературной модели при неоднородном нагреве металла ультракоротким лазерным импульсом, *Квантовая электроника*, 2015, том 45, номер 10, 917–926

Использование Общероссийского математического портала Math-Net.Ru подразумевает, что вы прочитали и согласны с пользовательским соглашением  
<http://www.mathnet.ru/rus/agreement>

Параметры загрузки:

IP: 18.118.137.13

26 декабря 2024 г., 09:36:13



**ВОЗДЕЙСТВИЕ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ВЕЩЕСТВО**

PACS 72.15.-v; 42.65.Re; 42.62.Cf

**Границы применимости двухтемпературной модели при неоднородном нагреве металла ультракоротким лазерным импульсом**

Д.С.Поляков, Е.Б.Яковлев

*На основе пространственно неоднородного кинетического уравнения для функции распределения электронов проанализирован нагрев металлов (серебра и алюминия) ультракороткими лазерными импульсами. Получены оценки времени термализации электронной подсистемы в широком диапазоне поглощенных плотностей энергии импульса. Установлены границы применимости двухтемпературной модели.*

**Ключевые слова:** фемтосекундный импульс, время термализации, двухтемпературная модель.

**1. Введение**

Хорошо известно, что воздействие мощного фемтосекундного лазерного импульса на металлическую мишень приводит к сильному перегреву электронной подсистемы относительно решеточной. Описание подобного состояния металла обычно опирается на так называемую двухтемпературную модель (ДТМ), содержащую систему связанных уравнений теплопроводности для электронов и решетки [1]. Строго говоря, описание состояния электронной подсистемы с использованием понятия температуры возможно лишь в условиях локального квазиравновесия. При воздействии ультракороткого лазерного импульса (УКИ) на металл такая ситуация складывается по истечении некоторого времени (времени термализации), зависящего от типа металла и режима обработки. В имеющихся на сегодняшний день экспериментальных [2–4] и теоретических [5, 6] работах получены оценки времени термализации при облучении импульсами с поглощенной плотностью энергии  $Q_a \ll 2$  мДж/см<sup>2</sup>, когда термализация преимущественно протекает после окончания импульса и может растягиваться на сотни фемтосекунд (вплоть до пикосекунд). Отметим, что в экспериментальной работе [2] исследуется металлическая пленка золота, в работе [3] – объемный металл (висмут), а в работе [4] – наночастицы серебра на графитовой подложке. В подобных условиях согласно [6] может наблюдаться уменьшение скорости передачи энергии от электронов к решетке, которое нивелируется при повышении интенсивности возбуждающего импульса.

С технологической точки зрения диапазон  $Q_a > 2$  мДж/см<sup>2</sup> представляет куда больший интерес. Хорошо известны приложения УКИ, использующие абляцию металла [7] (при  $Q_a > 100$  мДж/см<sup>2</sup>). В последнее время также наметился интерес к неразрушающему воздействию фемтосекундных импульсов на металл (примерный диапазон

$2$  мДж/см<sup>2</sup> <  $Q_a$  <  $20$  мДж/см<sup>2</sup>). Например, в недавней работе [8] показана возможность получения устойчивых к химическому травлению областей при облучении пленки хрома одиночными УКИ. Согласно гипотезе, высказанной в [9], появление устойчивости к химическому травлению может быть вызвано образованием защитного слоя окисла, в механизме роста которого играет существенную роль термоэмиссия электронов, поэтому исследование корректности применения ДТМ в данном случае является существенно важным.

Авторы теоретических работ [5, 6], опирающихся на кинетическое уравнение, ограничиваются рассмотрением пространственно однородных задач. Соответственно, важные вопросы транспорта энергии в металлах, облучаемых УКИ, исследованы только в рамках ДТМ, точные границы применимости которой в этом отношении не установлены. Также малоизученным остается вопрос об эволюции функции распределения в течение импульса при  $Q_a > 2$  мДж/см<sup>2</sup>, когда ее изменение обусловлено конкуренцией процессов возбуждения (поглощение квантов излучения) и релаксации (электрон-электронные столкновения), в то время как именно вид функции распределения определяет величину тока электронной эмиссии.

Целью настоящей работы является анализ нагрева объемных металлов УКИ на основе пространственно неоднородного кинетического уравнения Больцмана для функции распределения электронов и определение границ применимости ДТМ.

**2. Постановка задачи**

*Основные уравнения модели.* В работе рассматриваются однозонные металлы с параболическим законом дисперсии. Хорошим примером однозонного металла является алюминий, ширина энергетической щели между зоной проводимости и валентной зоной в котором составляет около 60 эВ. В случае благородных металлов такая модель наиболее применима для серебра, потолок d-зоны которого отделен от уровня Ферми энергией 3.8 эВ [10].

Рассмотренный в настоящей работе подход к описанию нагрева металла УКИ заключается в замене уравнения для электронной теплопроводности на кинетическое уравнение для функции распределения. Модель также до-

Д.С.Поляков, Е.Б.Яковлев. Университет ИТМО, Россия, 197101 С.-Петербург, Кронверкский просп., 49;  
e-mail: polyakovdmitry1988@gmail.com, yak@lastech.ifmo.ru

Поступила в редакцию 12 декабря 2014 г., после доработки – 7 июля 2015 г.

полняется уравнением, описывающим распределение плотности мощности излучения внутри металла, и предусматривает возникновение продольного электрического поля из-за неоднородности распределения электронов. Таким образом, система уравнений, подлежащих решению, вместе с начальными и граничными условиями имеет вид

$$\frac{\partial f}{\partial t} + v_x \frac{\partial f}{\partial x} + eE_x \frac{\partial f}{\partial p_x} = \left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{abs}} + \left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{e-e}} + \left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{e-ph}}, \quad (1)$$

$$c_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = \left(\frac{\partial E_i}{\partial t}\right)_{\text{e-ph}}, \quad (2)$$

$$\frac{\partial E_x(x, t)}{\partial x} = -\frac{e}{\varepsilon \varepsilon_0} \int (f_0 - f) \frac{2d\mathbf{p}}{(2\pi\hbar)^3}, \quad (3)$$

$$-\frac{1}{\hbar\omega} \frac{\partial q(x, t)}{\partial x} = \int \left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_+ \frac{2d\mathbf{p}}{(2\pi\hbar)^3}, \quad (4)$$

$$f(x, \mathbf{p}, 0) = f_0 = \left[ \exp\left(\frac{E(\mathbf{p}) - \mu(T_0)}{k_B T_0}\right) + 1 \right]^{-1},$$

$$p_x f(0, \mathbf{p}, t) = \int_{p_x^* < 0} (1 - K(\mathbf{p}^*)) p_x^* f(0, \mathbf{p}^*, t) R(\mathbf{p}^*, \mathbf{p}) d\mathbf{p}^*,$$

$$T_i(0, t) = T_0, \quad \left.\frac{\partial T_i}{\partial x}\right|_{x=0} = 0, \quad E_x(\infty, t) = 0, \quad q(0, t) = q_0(t),$$

где  $f = f(x, \mathbf{p}, t)$  – функция распределения электронов, такая что  $dN_e = 2f d\mathbf{p} d\mathbf{r} / (2\pi\hbar)^3$  – число электронов в элементе шестимерного фазового пространства координат и импульсов  $(\mathbf{r}, \mathbf{p})$ ; ось  $x$  направлена вглубь металла перпендикулярно поверхности (рассматривается одномерный случай);  $t$  – время;  $v_x$  – проекция скорости электрона на ось  $x$ ;  $E_x$  – проекция напряженности электрического поля на ось  $x$ ;  $e$  – заряд электрона; слагаемые  $(\partial f / \partial t)_{\text{abs}}$ ,  $(\partial f / \partial t)_{\text{e-e}}$ ,  $(\partial f / \partial t)_{\text{e-ph}}$  описывают поглощение излучения, электрон-электронные и электрон-фононные столкновения соответственно;  $T_i = T_i(x, t)$  – температура решетки;  $(\partial E_i / \partial t)_{\text{e-ph}}$  – изменение объемной плотности энергии решетки за счет взаимодействия с электронами;  $c_i$  – теплоемкость единицы объема решетки;  $\varepsilon_0$  – диэлектрическая постоянная;  $\varepsilon$  – диэлектрическая проницаемость;  $q(x, t)$  – плотность мощности излучения;  $\hbar$  – приведенная постоянная Планка;  $\omega$  – частота падающего излучения; выражение в правой части (4) определяет число квантов, поглощаемых в единицу времени в единице объема (подробнее см. ниже);  $q_0$  – плотность мощности на поверхности металла;  $E(\mathbf{p})$  – энергия электрона;  $\mu$  – химический потенциал;  $k_B$  – постоянная Больцмана;  $T_0$  – начальная температура; функция  $K(\mathbf{p})$  – вероятность того, что электрон с импульсом  $\mathbf{p}$  покинет металл при столкновении с поверхностью; функция  $R(\mathbf{p}, \mathbf{p}^*)$  – вероятность рассеяния  $\mathbf{p}^*$ -электрона поверхностью в состояние  $\mathbf{p}$ .

Уравнение (1) имеет вид стандартного кинетического уравнения, в правой части которого учтены столкновительные процессы трех типов: поглощение квантов излучения, электрон-электронные и электрон-фононные столкновения. Фононная подсистема предполагается находящейся в состоянии равновесия, поэтому для описания ее нагрева используется обычное уравнение теплопроводности (2). Выражение для слагаемого, описывающего передачу энергии от электронов к решетке при произволь-

ном виде электронной функции распределения, приведено в [11]. Уравнение (3) использовалось ранее для оценок величины электрического поля [12]. В граничном условии к кинетическому уравнению учтена возможность эмиссии электрона. В простейшем случае полагается, что все электроны, достигшие поверхности и имеющие достаточную энергию, покидают металл.

*Поглощение излучения.* Изменение функции распределения при поглощении квантов излучения (с учетом многофотонных процессов) описывается выражением

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{abs}} = \sum_n \int [w_n(\mathbf{p}_{+n}, \mathbf{p}) f_{+n} (1 - f) - w_n(\mathbf{p}, \mathbf{p}_{+n}) f (1 - f_{+n})] \frac{2d\mathbf{p}_{+n}}{(2\pi\hbar)^3},$$

где  $f_{+n} = f(x, \mathbf{p}_{+n}, t)$ ;  $\mathbf{p}_{+n}$  – импульс электрона после (или до) поглощения  $n$  фотонов;  $w_n(\mathbf{p}, \mathbf{p}_{+n})$  – вероятности  $\mathbf{p}$ -электрону в единицу времени осуществить акт  $n$ -фотонного поглощения с переходом в состояние  $\mathbf{p}_{+n}$ .

Вероятности  $w_n(\mathbf{p}, \mathbf{p}_{+n})$  выбираются в виде

$$w_n(\mathbf{p}, \mathbf{p}_{+n}) = \sigma_n \left(\frac{q}{\hbar\omega}\right)^n \frac{\pi^2 \hbar^3}{m_e} \frac{\delta(E(\mathbf{p}_{+n}) - E(\mathbf{p}) - n\hbar\omega)}{|\mathbf{p}_{+n}|},$$

где  $\sigma_n$  – сечения многофотонного поглощения [13];  $m_e$  – эффективная масса электрона;  $\delta(E(\mathbf{p}_{+n}) - E(\mathbf{p}) - n\hbar\omega)$  – дельта-функция, обеспечивающая сохранение энергии.

Подынтегральное выражение из правой части (4) определяется по формуле

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_+ = \sum_n \int w_n(\mathbf{p}, \mathbf{p}_{+n}) f (1 - f_{+n}) \frac{2d\mathbf{p}_{+n}}{(2\pi\hbar)^3}.$$

Используя оценки  $\sigma_n$  из [13], можно показать, что многоквантовые процессы нужно учитывать при  $q > 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>. В случае однофотонного поглощения описанный подход дает экспоненциальное поглощение с глубиной проникновения  $\delta = (\sigma_1 n_1^*)^{-1}$ , где  $n_1^*$  – концентрация электронов в интервале энергий от  $E_F - \hbar\omega$  до  $E_F$  ( $E_F$  – энергия Ферми).

*Электрон-электронные столкновения.* Интеграл электрон-электронных столкновений можно представить в следующем виде [14]:

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{e-e}} = \int [f' f'_1 (1 - f)(1 - f_1) - f f_1 (1 - f')(1 - f'_1)] \times \frac{|\mathbf{p}_1 - \mathbf{p}|}{m_e} \sigma_\Omega d\Omega \frac{2d\mathbf{p}_1}{(2\pi\hbar)^3},$$

где  $f_1 = f_1(x, \mathbf{p}_1, t)$ ;  $f' = f'(x, \mathbf{p}', t)$ ;  $f'_1 = f'_1(x, \mathbf{p}'_1, t)$ ;  $\sigma_\Omega$  – дифференциальное сечение рассеяния;  $d\Omega$  – элемент телесного угла.

Взаимодействие электронов друг с другом описывается экранированным кулоновским потенциалом с радиусом экранировки по модели Томаса–Ферми [15]. Сечение  $\sigma_\Omega$  для указанного типа потенциала вычисляется в первом борновском приближении (см., напр., [16]).

*Электрон-фононные столкновения.* Интеграл электрон-фононных столкновений, учитывающий процессы испускания и поглощения акустических фононов, определяется соотношением [17]:

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{e-ph} = \int w_{e-ph}(\mathbf{q}) \{ [f_{+q}(1-f)(N(\mathbf{q})+1) - f(1-f_{+q})N(\mathbf{q})] \times \delta(E(\mathbf{p}+\mathbf{q}) - E(\mathbf{p}) - \hbar\Omega(\mathbf{q})) + [f_{-q}(1-f)N(\mathbf{q}) - f(1-f_{-q})(N(\mathbf{q})+1)] \delta(E(\mathbf{p}-\mathbf{q}) - E(\mathbf{p}) + \hbar\Omega(\mathbf{q})) \} \frac{d\mathbf{q}}{(2\pi\hbar)^3},$$

где  $f_{+q} = f(x, \mathbf{p} + \mathbf{q}, t)$ ;  $f_{-q} = f(x, \mathbf{p} - \mathbf{q}, t)$ ;  $N(\mathbf{q})$  – функция распределения фононов;  $\mathbf{q}$  – квазиимпульс фонона;  $w_{e-ph}(\mathbf{q}) \propto |\mathbf{q}|$  определяет вероятности поглощения (испускания) акустических фононов [17], закон дисперсии которых берется в дебаевском приближении.

Результаты численного решения системы уравнений (1)–(4) при различных режимах обработки сравниваются с расчетами на основе ДТМ в традиционной постановке (см., напр., [18]):

$$c_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial x} \left( k_e(T_e, T_i) \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) = q_v - G(T_e - T_i),$$

$$c_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = G(T_e - T_i),$$

$$k_e \frac{\partial T_e}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0,$$

$$T_e(\infty, t) = T_0,$$

$$T_e(x, 0) = T_i(x, 0) = T_0,$$

где  $c_e$  – теплоемкость решетки;  $k_e$  – коэффициент теплопроводности электронов;  $q_v$  – тепловой источник для электронов, связанный с поглощением излучения;  $G$  – коэффициент электрон-решеточного теплообмена. При расчетах учтены зависимости параметров ДТМ от электронной и решеточной (в случае теплопроводности электронов) температур, представленные в следующем разделе.

Теплофизические характеристики металла (электронная теплоемкость, электронная теплопроводность и коэффициент электрон-решеточного теплообмена) рассчитываются исходя из тех же микроскопических параметров, которые были использованы при решении системы уравнений (1)–(4) (имеется в виду, например, радиус экранировки электрон-электронного взаимодействия, вероятности электрон-фононных столкновений, аппроксимация зонного спектра электронов и т. д.). Таким образом, на основе сравнения результатов расчета по ДТМ с результатами расчетов в рамках модели, опирающейся на кинетическое уравнение, возможна оценка погрешности расчетов по ДТМ и, следовательно, определение границ ее применимости.

### 3. Основные результаты и их обсуждение

Расчеты проводились для двух металлов: серебра и алюминия. Значения эффективных масс электронов в обоих случаях принимались равными массе электрона в вакууме. Характерная глубина проникновения излучения при экспоненциальном поглощении также принималась одинаковой для двух металлов и равной  $\delta = 10$  нм. Таким образом, в рамках принятых модельных представлений индивидуальные различия металлов преимущественно

определяются концентрацией электронов проводимости  $n_e$ , которая составляет  $5.86 \times 10^{22} \text{ см}^{-3}$  для серебра и  $18 \times 10^{22} \text{ см}^{-3}$  для алюминия. Временная зависимость поглощенной плотности мощности излучения (форма импульса) выбиралась в виде

$$q_0(t) = \frac{Q_a}{t_0^2} t \exp\left(-\frac{t}{t_0}\right),$$

где  $t > 0$ , а  $t_0$  – характерный параметр, имеющий смысл длительности переднего фронта импульса (полная длительность импульса  $t_p = 4t_0$ , если время окончания импульса оценивать по уровню 20% от максимума зависимости  $q_0(t)$ ).

Расчеты проводились для излучения на длине волны 1.06 мкм (соответствующая энергия кванта  $\hbar\omega = 1.2$  эВ).

*Метод численного моделирования.* Ввиду большого числа аргументов функции распределения и сложной структуры многомерных интегралов столкновений применение конечно-разностных методов численного моделирования чрезвычайно затруднено. В подобной ситуации целесообразно прибегнуть к так называемым методам прямого статистического моделирования.

Моделируемая среда представляется совокупностью большого числа частиц, начальные координаты и импульсы которых определяются в соответствии с начальным видом их функции распределения. Далее, посредством некоторой статистической процедуры, моделирующей физические процессы, которые приводят к изменению координат и импульсов частиц (процессы столкновений и бесстолкновительное движение), определяется эволюция системы во времени. При расчете электрон-электронных столкновений используется вычислительная схема, описанная в [19] (метод частиц в ячейках) и дополненная условием запрета перехода электрона в заполненные состояния. Моделирование электрон-фононных столкновений и поглощения квантов излучения осуществляется исходя из значений вероятностей соответствующих процессов, которые могут быть получены в явном виде для каждого электрона. Моделирование бесстолкновительного движения на каждом шаге по времени осуществляется вычислением изменения координат электрона в соответствии с его скоростью.

Метод прямого статистического моделирования используется для решения уравнения (1) и при вычислении интегралов, стоящих в правых частях уравнений (2)–(4). Дальнейшее решение уравнений (2)–(4) осуществляется конечно-разностными методами.

Отметим, что использованная в работе схема моделирования электрон-электронных столкновений открывает способ расчета частот электрон-электронных столкновений для равновесных условий в широком диапазоне температур, необходимых для расчета коэффициента электронной теплопроводности.

*Равновесные частоты электрон-электронных столкновений.* В качестве подтверждения адекватности использованного в работе метода численного моделирования приведем результаты расчета частот электрон-электронных столкновений в равновесных условиях. Для частот столкновений электрона с импульсом  $\mathbf{p}$  с другими электронами, определяющими теплопроводность электронного газа, согласно работам [20, 21] в низкотемпературной области справедлива следующая аналитическая зависимость:

$$v_{e-e}(p, T_e) = \frac{e^4}{16\pi^3 \hbar^4 \epsilon_0^2} \frac{k^2}{v^3 q_s^2} \left( \frac{2k}{4k^2 + q_s^2} + \frac{1}{q_s} \arctan\left(\frac{2k}{q_s}\right) \right) \times \left[ \pi^2 + \left( \frac{E - E_F}{k_B T_e} \right)^2 \right] (k_B T_e)^2, \tag{5}$$

где  $p = |\mathbf{p}|$ ;  $k = p/\hbar$ ,  $v = p/m_e$  – модуль импульса, волнового вектора и скорости электрона;  $q_s = 1/r_s$  – обратная длина экранировки по Томасу–Ферми.

На рис.1 приведены результаты расчета зависимости  $v_{e-e}(p_F, T_e)$  ( $p_F$  – импульс Ферми) и ее сравнение с аналитической зависимостью (5) для серебра и алюминия. Как видно из рис.1, в области температур  $T_e < 0.1T_F$  ( $T_F$  – температура Ферми, составляющая  $6.4 \times 10^4$  К для алюминия и  $13.5 \times 10^4$  К для серебра) совпадение между аналитической зависимостью и расчетами хорошее. При  $T_e > 0.1T_F$ , как и следовало ожидать, параболическая зависимость насыщается, и частота столкновений растет медленнее параболы. Для алюминия значения частот примерно в 2.5 раза меньше, чем для серебра, что преимущественно связано с меньшим радиусом экранировки электрон-электронного взаимодействия.

*Теплофизические параметры металлов, использованные в расчетах по ДТМ.* Как уже отмечалось, для достижения поставленной в работе цели необходимо корректно определить теплофизические параметры металла, входящие в систему уравнений ДТМ. На рис.2 показаны температурные зависимости электронной теплоемкости для серебра и алюминия в широком диапазоне электронных температур. В соответствии со сделанными ранее допущениями вычисления проводились по однозонной модели с параболическим законом дисперсии. Из рис.2 видно, что линейная зависимость теплоемкости электронов от электронной температуры справедлива при  $T_e < 0.15T_F$ . В случае высоких ( $T_e > T_F$ ) температур теплоемкость выходит на постоянное значение  $c_e = 3/2 n_e k_B$ , что соответствует значению теплоемкости классического идеального газа. На рис.3 показаны рассчитанные температурные зависимости коэффициента электронной теплопроводности  $k_e$ , обусловленные как электрон-электронными, так и электрон-фононными столкновениями. На рис.3,а показана зависимость  $k_e(T_e)$  для серебра при различных температурах решетки. На рис.3,б показана рассчитанная зависимость  $k_e(T_e)$  для алюминия при комнатной температуре решетки и сравнение с данными работы [11]. Как

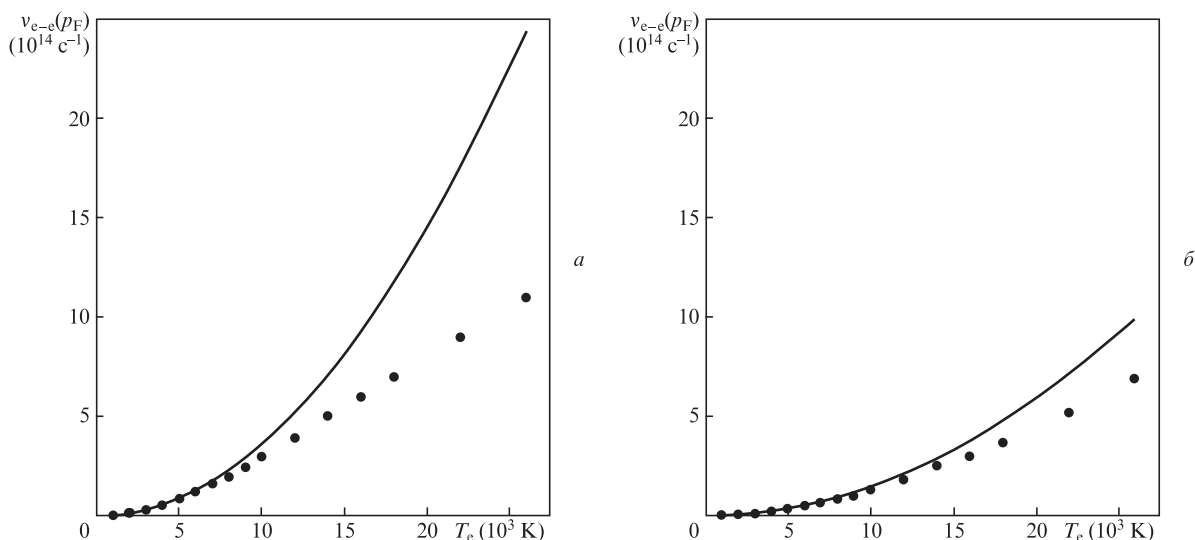


Рис.1. Температурные зависимости частот электрон-электронных столкновений (точки – расчет, сплошная линия – аналитическая зависимость (5)) для серебра (а) и алюминия (б).

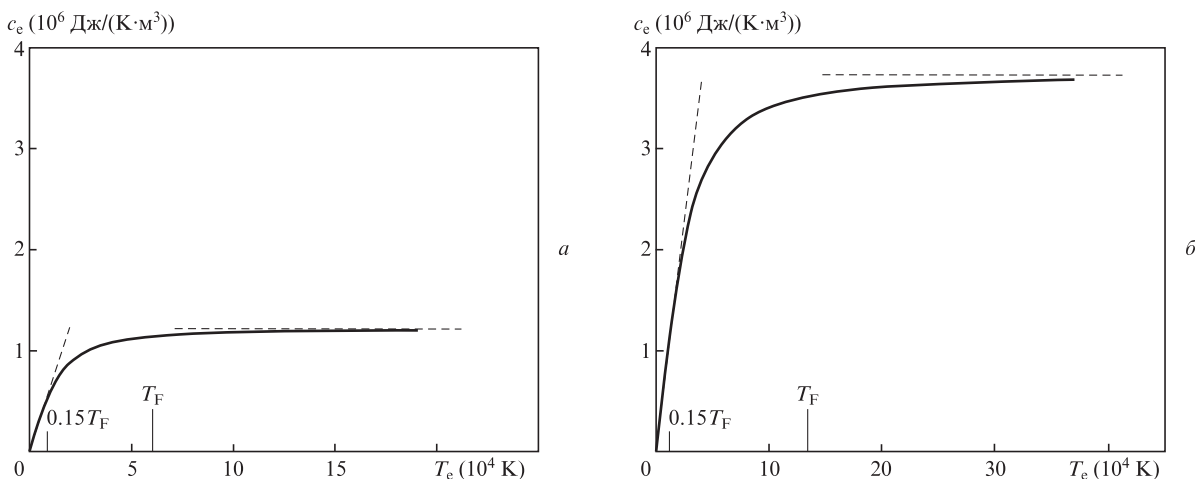


Рис.2. Зависимости теплоемкости электронного газа от температуры электронов для серебра (а) и алюминия (б).

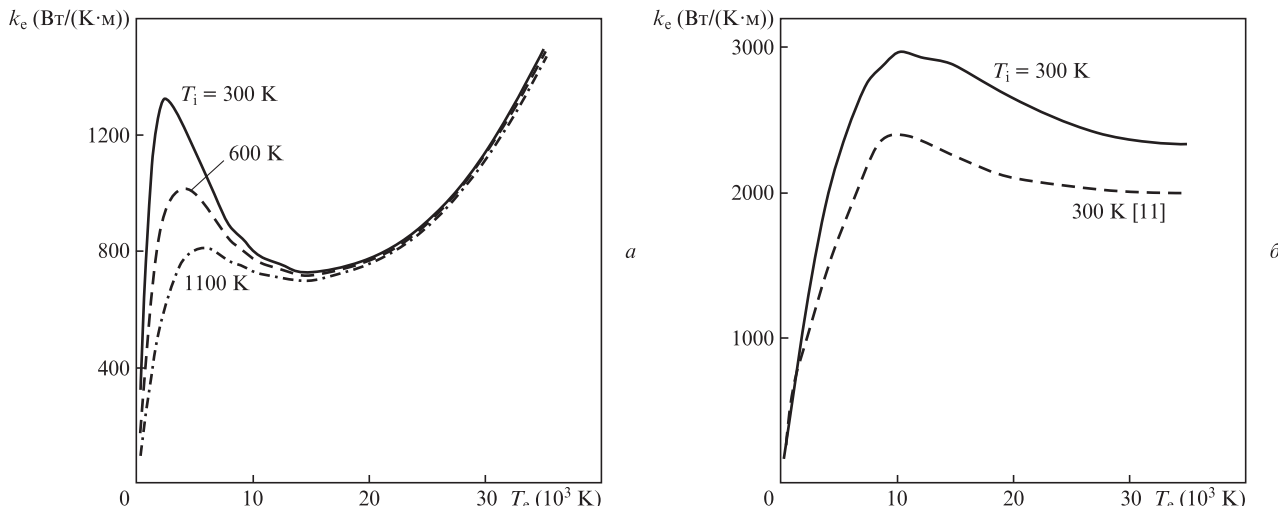


Рис.3. Зависимости электронной теплопроводности от электронной температуры при различных температурах решетки для серебра (а) и алюминия (б).

видно, совпадение расчетов можно считать удовлетворительным.

В случае серебра наблюдается хорошо выраженная особенность – существенно немонотонное поведение зависимости  $k_e(T_e)$  (так же как и в [11] для золота). Подобное поведение легко понять, если температурную зависимость теплопроводности аппроксимировать по формуле Друде

$$k_e = \frac{c_e \langle v^2 \rangle}{3(v_{e-ph}^{eff} + v_{e-e}^{eff})},$$

где  $\langle v^2 \rangle$  – средний квадрат скорости электронов;  $v_{e-ph}^{eff}$  и  $v_{e-e}^{eff}$  – эффективные частоты электрон-фононных и электрон-электронных столкновений. При низких температурах доминирует электрон-фононное рассеяние ( $v_{e-ph}^{eff} \gg v_{e-e}^{eff}$ ), интенсивность которого не зависит от электронной температуры. Ввиду того, что  $c_e \propto T_e$ , а  $\langle v^2 \rangle$  в низкотемпературной области слабо зависит от  $T_e$ , начальный рост теплопроводности происходит по линейному закону. По мере повышения температуры становится существенным электрон-электронное рассеяние ( $v_{e-e}^{eff} \propto T_e^2$ ), которое стремится уменьшить теплопроводность. Этим объясняется насыщение линейной зависимости, появление максимума теплопроводности и ее последующее снижение. При дальнейшем повышении электронной температуры  $v_{e-e}^{eff}$  растет значительно медленнее параболы (см. рис.1), в то время как становится заметным рост  $\langle v^2 \rangle$  и продолжает расти  $c_e$ . Следовательно, начиная с определенного момента зависимость  $k_e(T_e)$  достигает локального минимума (при  $T_e \approx 15$  кК в случае серебра) и начинает монотонно расти. Аналогичная особенность имеет место и в случае алюминия, однако она менее выражена.

Зависимость от ионной температуры проявляется только в низкотемпературной области, где существенно электрон-фононное рассеяние. В этой области  $k_e(T_e, T_i) \propto T_i^{-1}$ , так как  $v_{e-ph}^{eff} \propto T_i$ . В области электронных температур, где доминирует электрон-электронное рассеяние, зависимость электронной теплопроводности от ионной температуры незначительна.

Зависимость коэффициента  $G$  от электронной и решеточной температур в случае однозонного спектра электронов малозначительна. Значения  $G$  для серебра и алю-

миния составили  $3.5 \times 10^{16}$  Вт/(К·м<sup>3</sup>) и  $3 \times 10^{17}$  Вт/(К·м<sup>3</sup>) соответственно.

*Оценки времени термализации.* Решение задачи (1)–(4) в полной постановке с вычислительной точки зрения достаточно трудоемко и требует значительного времени. Предварительно имеет смысл провести оценки времени термализации в широком диапазоне плотностей энергии импульса. Такие оценки могут быть получены, если пренебречь процессами транспорта энергии и электрон-фононными столкновениями (ввиду малости передачи энергии при единичном столкновении) в уравнении (1), т.е. рассматривая только возбуждение (поглощение квантов излучения) и релаксацию за счет электрон-электронных столкновений.

Вначале коротко опишем механизм изменения функции распределения. На рис.4 показана типичная эволюция функции распределения электронов серебра по энергии вблизи поверхности при облучении импульсом с  $Q_a = 30$  мДж/см<sup>2</sup> и  $t_0 = 40$  фс. На начальной стадии воздействия возбуждение приводит к появлению ступенек с шириной, равной энергии кванта ( $\hbar\omega = 1.2$  эВ). В дальнейшем электрон-электронные столкновения приводят к постепенному размытию ступенек, и через некоторое время функция распределения становится близкой к равновесной. Подобный механизм также описан в работах [5,6] и соответствует экспериментальным данным по сверхбыстрой эмиссионной спектроскопии, полученным в работах [2,4] при низких плотностях энергии возбуждающего импульса. На рис.5 приведено сравнение рассчитанной функции распределения (в этом случае при расчетах для более корректного сопоставления уже учтены электрон-фононные столкновения и перенос энергии) с полученной в эксперименте [2] для золота при  $Q_a \approx 0.3$  мДж/см<sup>2</sup>,  $t_p = 180$  фс и  $\hbar\omega = 1.84$  эВ. Как видно, совпадение вполне удовлетворительное. В качестве меры отклонения функции распределения от равновесной введем величину

$$Cr(t) = \frac{\int_0^\infty |f - f_0| g(E) dE}{\int_0^\infty f_0 g(E) dE},$$

где  $f$  – текущая функция распределения;  $f_0$  – равновесная функция распределения, соответствующая той же внут-

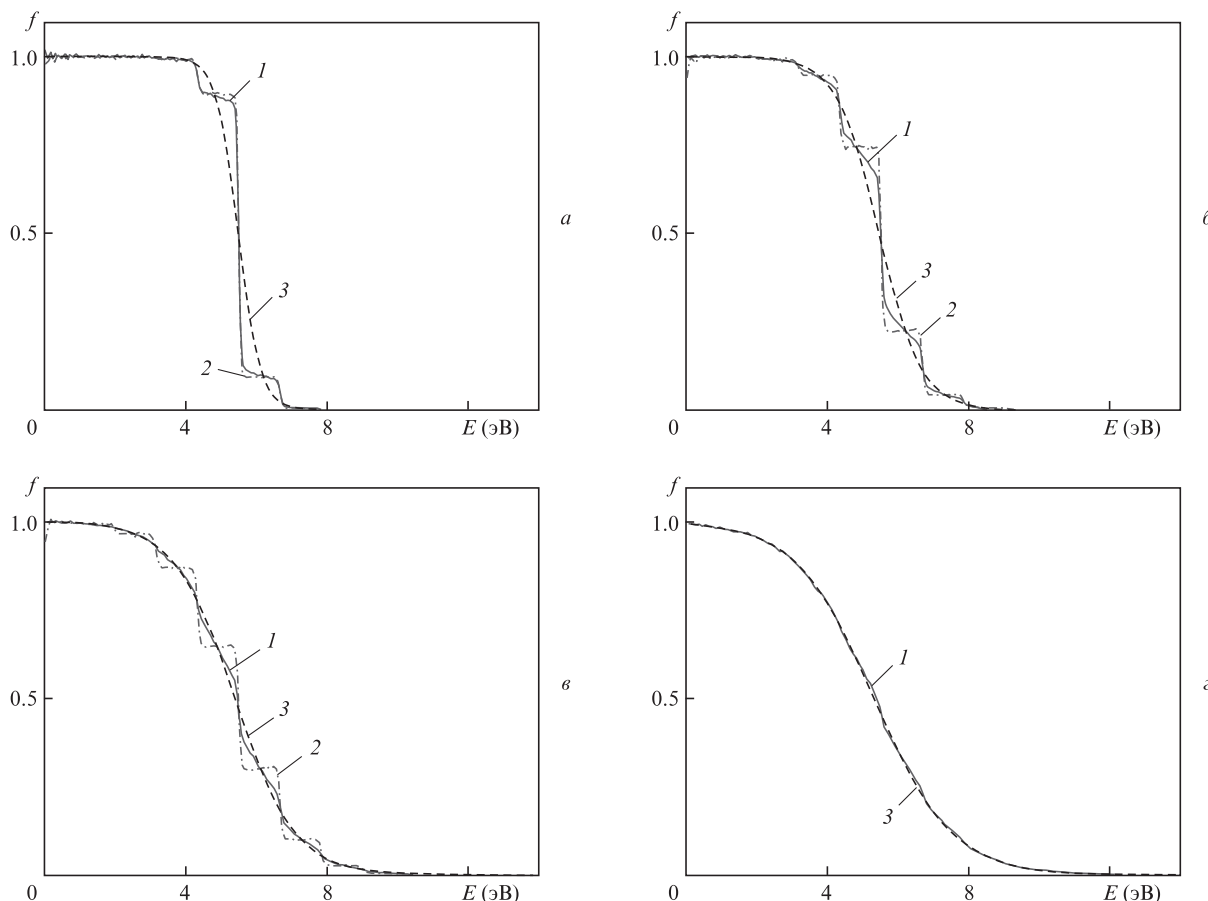


Рис.4. Функции распределения электронов серебра по энергии при облучении импульсом с параметрами  $Q_a = 30$  мДж/см<sup>2</sup>,  $t_0 = 40$  фс на поверхности с учетом возбуждения и релаксации (1) и без учета релаксации (2), а также равновесная функция распределения (3) в моменты времени 7 (а), 14 (б), 21 (в) и 28 фс (г).

ренной энергии;  $g(E)$  – плотность уровней. В соответствии с определением  $Cr(t)$  – это отношение площади, заключенной между кривыми, соответствующими равновесной и неравновесной функциям распределений, к полной площади под функцией распределения (т.е. к концентрации электронов по условию нормировки функции  $g(E)$ ). Функция  $Cr(t)$  возрастает до некоторого максимального значения с последующим спадом. Время термализации  $\tau_0$  оценим по следующему критерию:  $Cr(\tau_0) = 0.2Cr_{max}$  ( $Cr_{max}$  – максимальное значение  $Cr(t)$ ).

На рис.6,а показана зависимость  $\tau_0$  от поглощенной плотности энергии вблизи поверхности металла. При  $Q_a = 100$  мДж/см<sup>2</sup> (характерное значение порога абляции металлов) время термализации на поверхности составляет 17 фс для серебра и 30 фс для алюминия. При увеличении плотности энергии время релаксации медленно снижается и стабилизируется на 13 и 23 фс для серебра и алюминия соответственно. По мере уменьшения плотности энергии время термализации увеличивается. Поскольку плотность мощности убывает по глубине, то время термализации в объеме металла будет больше, чем на поверхности. На рис.6,б показано распределение времени  $\tau_0$  по глубине при  $Q_a = 100$  мДж/см<sup>2</sup>. Видно, что на масштабах скин-слоя ( $\delta = 10$  нм) время термализации существенно не изменяется как в случае серебра, так и в случае алюминия. В более глубоких слоях релаксация растягивается на десятки-сотни фемтосекунд, однако нагрев этих слоев относительно мал.

Плотность тока эмиссии непосредственно определяется видом функции распределения вблизи поверхности металла. При этом ясно, что определяющим является поведение функции распределения в области  $E > U_0$  ( $U_0$  – величина потенциального барьера на границе металла). Приведенные выше значения времени релаксации получены на основе критерия, учитывающего отклонения функции распределения от равновесной во всем диапазоне энергий. Ввиду этого, оценку влияния неравновесности распределения электронов на плотность тока эмиссии целесообразно основывать на другом критерии, а именно на исследовании относительной ошибки вычисления эмиссионного тока по равновесному распределению:

$$Cr_{em}(t) = \frac{|j_e(f) - j_e(f_0)|}{j_e(f)},$$

где

$$j_e(f) = \frac{4\pi em_e}{(2\pi\hbar)^3} \int_{U_0}^{\infty} (E - U_0) f_s(E) dE \tag{6}$$

– плотность тока эмиссии, а  $f_s(E)$  – функция распределения у поверхности. Если  $f_s = f_0$  и выполнено  $U_0 - \mu(T_e) \gg k_B T_e$ , то формула (6) переходит в закон термоэмиссии Ричардсона:

$$j_R = BT_e^2 \exp\left(-\frac{A_0}{k_B T_e}\right),$$

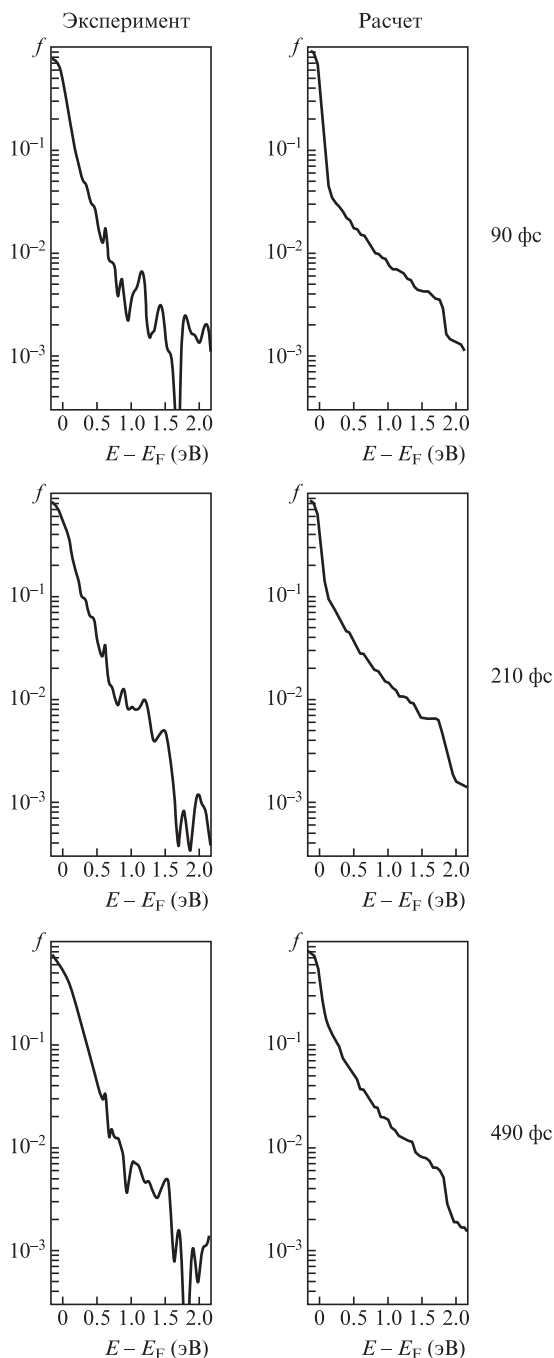


Рис.5. Сравнение рассчитанной функции распределения электронов по энергии с полученной в эксперименте [2] для золота в различные моменты времени.

где  $B = 4\pi m_e k_B^2 / (2\pi\hbar)^3 = 120 \text{ A}/(\text{см}^2 \cdot \text{K}^2)$ , а  $A_0 = U_0 - E_F$  – работа выхода.

«Эмиссионное» время релаксации  $\tau_0^{\text{em}}$  определим по следующему критерию:  $\text{Cr}_{\text{em}}(\tau_0^{\text{em}}) = 0.15$ . На рис. 7 показана зависимость  $\tau_0^{\text{em}}$  от поглощенной плотности энергии. Видно, что «эмиссионное» время релаксации меньше времени релаксации  $\tau_0$ . Особенно разница заметна в области низких плотностей энергии. Такое различие связано с тем, что частоты электрон-электронных столкновений высокоэнергетичных электронов больше, следовательно, «хвост» функции распределения выстраивается быстрее. Ясно, что основной вклад в полное число эмитированных электронов вносят моменты времени, когда температура электронов близка к максимальной. Максимальная темпера-

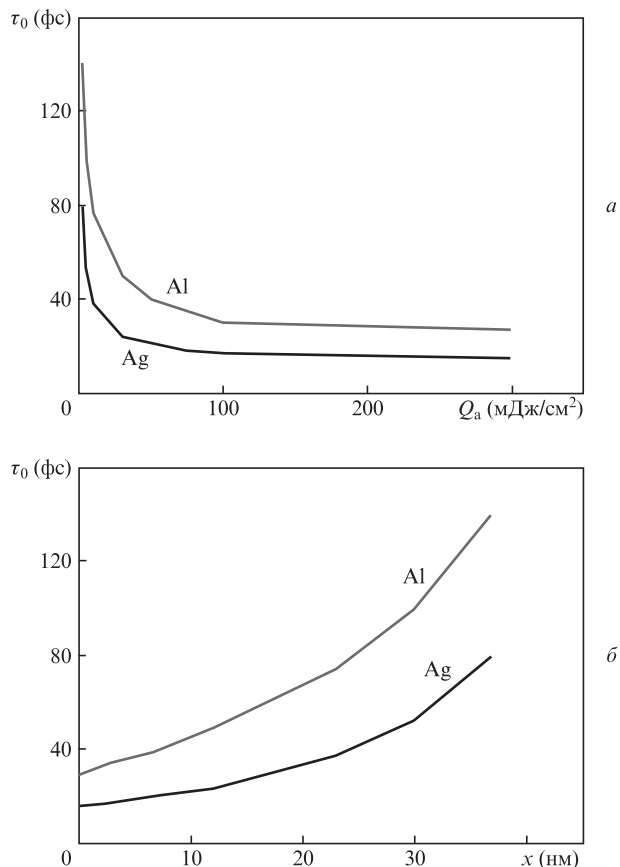


Рис.6. Зависимости времени релаксации на поверхности от поглощенной плотности энергии при  $t_0 = 40 \text{ фс}$  (а) и от глубины при  $Q_a = 100 \text{ мДж/см}^2$  и  $t_0 = 40 \text{ фс}$  (б) для серебра и алюминия.

тура достигается ближе к концу импульса, т. е. при  $t \approx t_p$ . Так как  $\tau_0^{\text{em}} \ll t_p$  ( $t_p = 160 \text{ фс}$ ), то вкладом неравновесных электронов в общее число электронов, испущенных с поверхности, можно пренебречь.

Таким образом, на основе проделанных оценок можно сделать вывод о том, что при энерговыделениях порядка пороговых для абляции термализация электронов осуществляется достаточно быстро (см. рис.6) и влияние неравновесности распределения электронов на нагрев металла невелико. Диапазон меньших плотностей энергии требует дополнительного исследования. В отношении эмиссионных явлений справедливо утверждать, что во всем рассмотренном диапазоне плотностей энергии (2–300 мДж/см<sup>2</sup>) эмиссия электронов может быть описана с использованием понятия температуры, соответствующей объемной плотности энергии электронов у поверхности металла. Отметим, что само значение этой температуры при учете транспорта энергии может отличаться от предсказаний ДТМ.

*Динамика температуры электронов и решетки.* Учет транспорта энергии существенно не меняет оценок времени термализации, сделанных выше. На рис.8,а показаны зависимости электронной температуры от времени, рассчитанные на основе ДТМ ( $T_e^{\text{ttm}}(t)$ ) и на основе кинетического уравнения ( $T_e^{\text{kin}}(t)$ ), на поверхности серебра в течение импульса с параметрами  $Q_a = 5 \text{ мДж/см}^2$ ,  $t_0 = 40 \text{ фс}$ . В области  $t < \tau_0$  (т. е. когда распределение неравновесное) температура понимается как величина, связь которой с внутренней энергией дается тем же соотношением, что и при равновесном распределении. Рис.8,а иллюстрирует



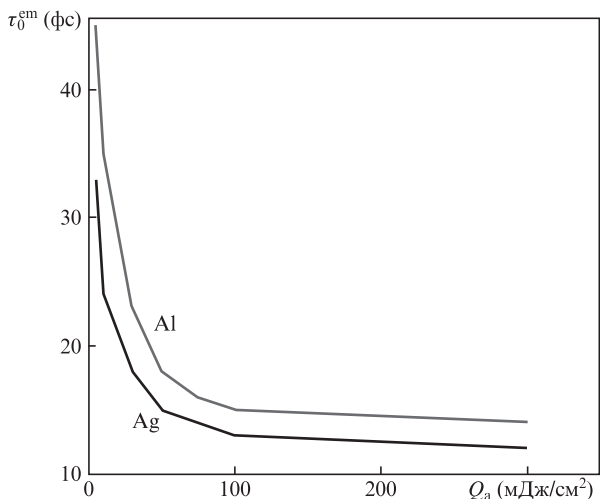


Рис.7. Зависимость «эмиссионного» времени релаксации на поверхности от поглощенной плотности энергии при  $t_0 = 40$  фс для серебра и алюминия.

типичное поведение электронной температуры на поверхности при облучении УКИ. Видно, что на начальном этапе температура  $T_e^{kin}(t)$  растет быстрее, т. е. нагрев ближе к адиабатическому. Впоследствии более интенсивный отток энергии от поверхности приводит к тому, что зависимость  $T_e^{kin}(t)$  оказывается ниже зависимости  $T_e^{lum}(t)$ . Относительная ошибка вычисления максимальной электронной температуры по ДТМ в данном случае равна 13%. Именно разница  $T_e^{lum}(t) - T_e^{kin}(t) > 0$ , сохраняющаяся практически на всей двухтемпературной стадии, обуславливает разницу в конечной (максимальной) температуре решетки. Влияние вида неравновесной функции распределения на обмен энергией между электронами и решеткой пренебрежимо мало ввиду малости времени термализации на всей глубине по сравнению с характерным временем выравнивания электронной и решеточной температур, что согласуется с результатами [6]. Относительная ошибка вычисления приращения решеточной температуры за импульс равна 10%.

Объяснить особенности поведения электронной температуры, по-видимому, можно следующим образом. ДТМ исходит из закона Фурье, предполагающего пропорциональность теплового потока в некоторый момент времени градиенту температур в тот же момент времени. В действительности при высокоскоростном нагреве возникаю-

щий в среде тепловой поток будет несколько запаздывать по отношению к быстромменяющемуся перепаду температур. Таким образом, на начальном этапе воздействия импульса, когда скорость нагрева велика, энергия не успевает отводиться от приповерхностных слоев, что обуславливает несколько ускоренный рост электронной температуры в начале импульса. В дальнейшем влияние этого эффекта становится менее существенным, и начиная с момента  $t \approx 40$  фс, как видно из рис.6,а, наблюдается более интенсивный отток энергии с поверхности. Закон Фурье предполагает малость длины свободного пробега электрона по сравнению с масштабом неоднородности нагрева. При  $T_e \approx 5000$  К длина свободного пробега составляет около 10 нм, что сопоставимо с глубиной проникновения излучения ( $\delta = 10$  нм), определяющей характерный масштаб, на котором существенно меняется температура. Горячие электроны с поверхности, пролетая расстояние  $\delta$  за время  $\delta/v \approx 10$  фс ( $v \approx 10^6$  м/с – характерная скорость электрона), способствуют ускоренному выносу энергии из скин-слоя. На рис.8,а этому соответствует снижение скорости нагрева на интервале 30–140 фс. Далее, по мере оттока энергии из скин-слоя, масштаб неоднородности нагрева увеличивается, и дальнейшее остывание металла может быть описано по ДТМ.

Повышение плотности энергии импульса приводит к более частым электрон-электронным столкновениям и снижает длину свободного пробега. Следовательно, погрешность вычисления температуры по ДТМ снижается при повышении плотности энергии импульса. На рис.9 показана зависимость относительных погрешностей выполненных на основе ДТМ вычислений максимальных электронной ( $\delta_T(T_e)$ ) и решеточной ( $\delta_T(T_i)$ ) температур для серебра и алюминия от поглощенной плотности энергии (зависимости построены при  $t_0 = 40$  фс). Если считать максимально допустимым уровень погрешности, равный 10%, то граничная плотность энергии  $Q_T(T_e)$ , выше которой традиционный двухтемпературный подход можно считать адекватным для вычисления максимальной электронной температуры, составляет 7.5 мДж/см<sup>2</sup> для серебра и 28 мДж/см<sup>2</sup> для алюминия. При расчете нагрева решетки граничная плотность энергии  $Q_T(T_i)$  составляет 6.7 мДж/см<sup>2</sup> и 10 мДж/см<sup>2</sup> для серебра и алюминия соответственно. В случае серебра значение  $Q_T(T_i)$  заметно меньше пороговой плотности энергии плавления, которое согласно проведенным расчетам составило 35 мДж/см<sup>2</sup> (под порогом плавления здесь понимается минимальная по-

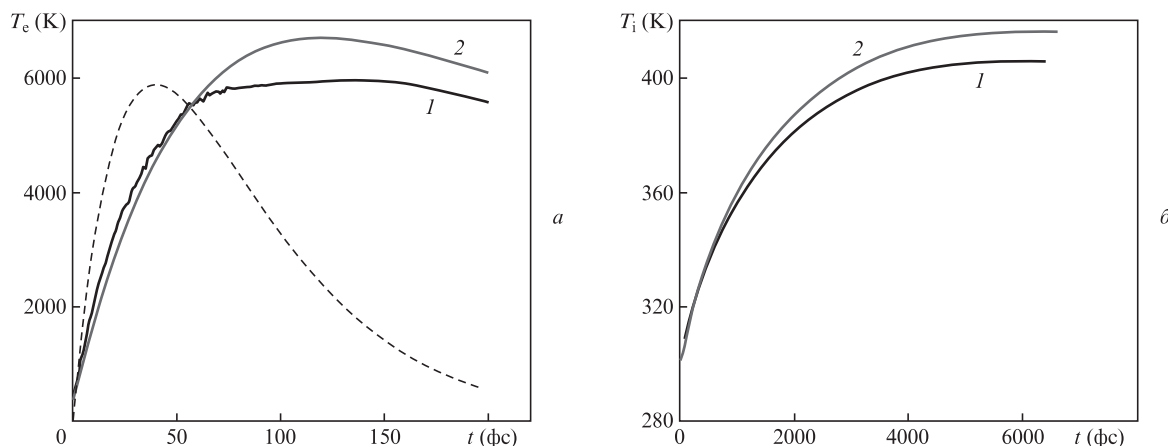


Рис.8. Временные зависимости электронной (а) и решеточной (б) температур на поверхности серебра, рассчитанные по модели, опирающейся на кинетическое уравнение (1), и по ДТМ (2) (штриховой кривой показана форма импульса).

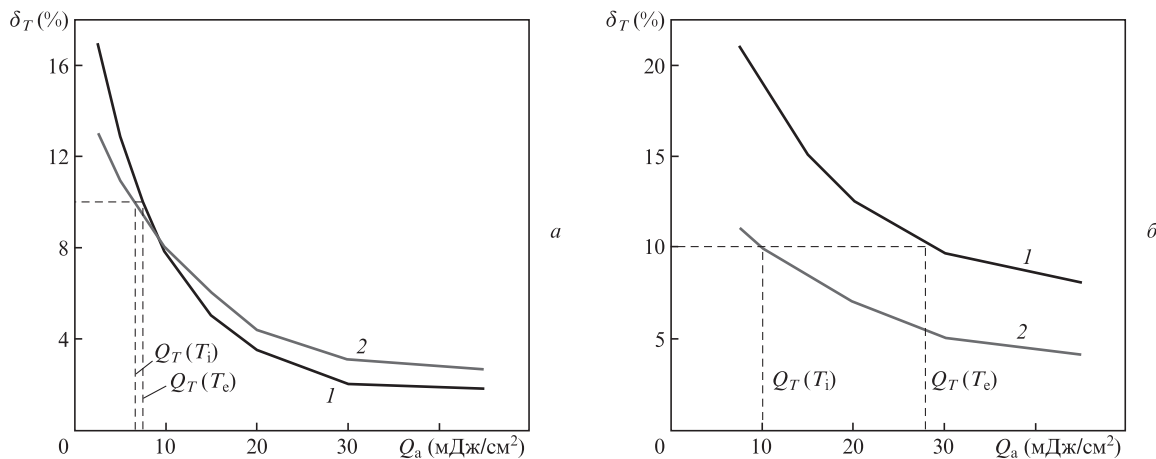


Рис.9. Зависимости погрешностей вычисления максимальной температуры электронов (1) и решетки (2) по ДТМ для серебра (а) и алюминия (б).

глощенная плотность энергии, необходимая для достижения температуры плавления на поверхности; вопросы, связанные с возможным перегревом решетки выше температуры плавления при воздействии УКИ на металл, здесь не рассматриваются). В случае алюминия  $Q_T(T_i)$  лежит вблизи порога плавления.

*Влияние особенностей динамики электронной температуры на эмиссию электронов.* Ввиду сильной чувствительности термоэмиссии электронов к электронной температуре на поверхности, даже незначительная погрешность ее вычисления может приводить к существенным отклонениям в плотности эмиссионного тока и, как следствие, в полном числе испущенных электронов. На рис.10 показаны зависимости плотности тока эмиссии от времени, вычисленные в соответствии с ДТМ и в соответствии с предложенной в работе моделью, при  $Q_a = 5$  мДж/см<sup>2</sup> и  $t_0 = 40$  фс для серебра (динамика электронной температуры поверхности в этом случае показана на рис.8,а). Отметим, что здесь речь идет только о потоке электронов, вылетающих с поверхности, в действительности часть вылетевших электронов будет возвращаться назад. Вклад от промежутка времени  $t < \tau_0^{em}$  в полное число испущенных электронов пренебрежимо мал. Как видно из рис.10,

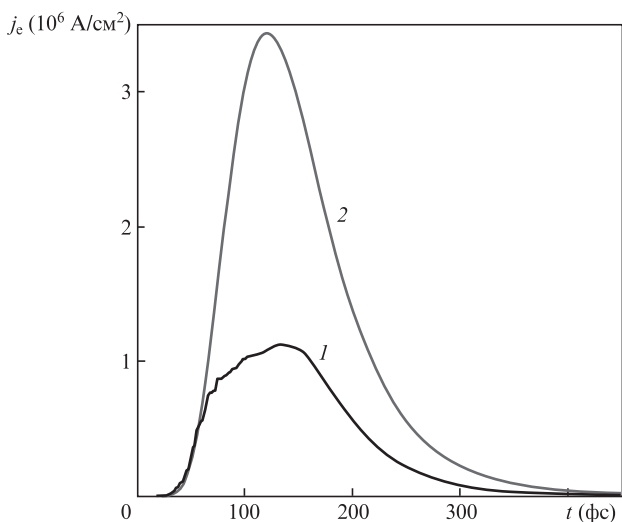


Рис.10. Зависимости плотности тока электронной эмиссии от времени, рассчитанные на основе кинетического уравнения (1) и на основе ДТМ (2).

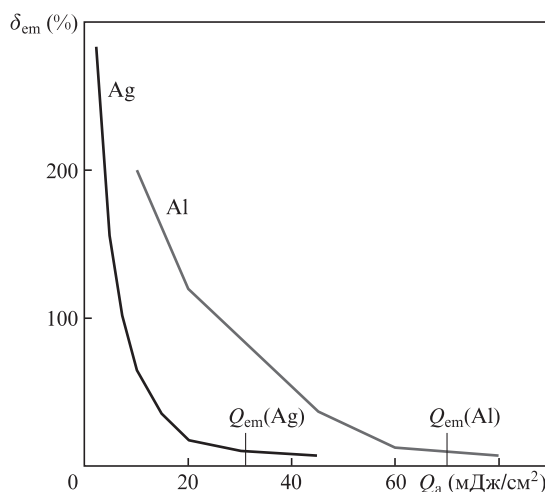


Рис.11. Зависимости относительной погрешности вычисления полного числа эмитированных электронов по ДТМ для серебра и алюминия при  $t_0 = 40$  фс.

расчет по ДТМ заметно завышает плотность тока эмиссии. Полное число электронов, вылетевших с поверхности, примерно в 2.5 раза меньше, чем предсказывает ДТМ при данном режиме обработки. На рис.11 показана зависимость относительной погрешности вычисления полного числа эмитированных с единицы площади электронов в зависимости от поглощенной плотности энергии для серебра и алюминия. Оценивая границу применимости ДТМ в отношении эмиссионных явлений по уровню 10%, получим, что ДТМ работает при  $Q_a > 30$  мДж/см<sup>2</sup> при нагреве серебра и  $Q_a > 70$  мДж/см<sup>2</sup> при нагреве алюминия.

#### 4. Заключение

Резюмируя изложенное в работе, приведем ее основные результаты. Время термализации электронов внутри скин-слоя типичных металлов (серебро, алюминий) при воздействии УКИ, приводящих к абляции ( $Q_a \approx 100$  мДж/см<sup>2</sup>), не превышает 45 фс, и нагрев такими импульсами с достаточной точностью может быть описан в рамках ДТМ. Время термализации растет при понижении плотности энергии импульса и достигает сотен фемтосекунд при  $Q_a \approx 2.5$  мДж/см<sup>2</sup>. Равновесный высокоэнергетичный хвост функции распределения выстраивается заметно быстрее,

чем равновесная функция распределения в целом, и эмиссионные процессы могут быть описаны с использованием понятия температуры во всем рассмотренном диапазоне плотностей энергий (2.5–300 мДж/см<sup>2</sup>). Анализ нагрева с учетом транспорта энергии показал, что расчет на основе ДТМ обладает определенной погрешностью, зависящей от режима обработки. Границы применимости ДТМ по поглощенной плотности энергии при вычислении максимальной электронной температуры составляют 7.5 мДж/см<sup>2</sup> для серебра и 28 мДж/см<sup>2</sup> для алюминия, а при вычислении максимальной температуры решетки 6.7 мДж/см<sup>2</sup> для серебра и 10 мДж/см<sup>2</sup> для алюминия, если максимально допустимой считать погрешность в 10%. Обнаруженные отклонения в динамике электронной температуры поверхности обуславливают заметное уменьшение тока эмиссии и полного числа эмитированных электронов. Граница применимости ДТМ при вычислении полного числа испущенных с единицы поверхности электронов по поглощенной плотности энергии составляет 30 мДж/см<sup>2</sup> для серебра и 70 мДж/см<sup>2</sup> для алюминия при погрешности 10%.

Установленные в работе граничные значения плотности энергии импульса позволяют утверждать, что при анализе нагрева решетки объемных металлов (серебро, алюминий) УКИ с плотностью энергии выше порога плавления можно использовать традиционную ДТМ, а при энергозвложениях ниже порога плавления предпочтительным является использование кинетического подхода. При облучении УКИ для анализа процесса электронной эмиссии с поверхности объемного металла ДТМ может применяться при энергозвложениях выше порога абляции для алюминия и выше порога плавления для серебра.

Работа выполнена при поддержке гранта РНФ (соглашение № 14-12-00351).

1. Анисимов С.И., Имас Я.А., Романов Г.С., Ходыко Ю.В. *Действие излучения большой мощности на металлы* (М.: Наука, 1970).
2. Fann W.S., Storz R., Tom H.W.K. *Phys. Rev. B*, **46**, 13592 (1992).
3. Faure J. et al. *Phys. Rev. B*, **88**, 075120 (2013).
4. Merschdorf M., Kennerknecht C., Willig K., Pfeiffer W. *New J. Phys.*, **4**, 95 (2002).
5. Mueller B.Y., Rethfeld B. *Phys. Rev. B*, **87**, 035139 (2013).
6. Rethfeld B., Kaiser A., Vicanek M., Simon G. *Phys. Rev. B*, **65**, 214303 (2002).
7. Gamaly E.G. *Phys. Rep.*, **508**, 91 (2011).
8. Veiko V.P., Jarchuk M.V., Ivanov A.V. *Laser Phys.*, **22**, 1310 (2012).
9. Yakovlev E.B., Sergaeva O.N., Svirina V.V., Yarchuk M.V. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **9065**, 906509 (2013).
10. Hufner S. *Photoelectron Spectroscopy: Principles and Applications* (Berlin: Springer-Verlag, 1995).
11. Петров Ю.В., Иногамов Н.А., Мигдал К.П. *Письма в ЖЭТФ*, **97**, 24 (2013).
12. Булгакова Н.М., Стоян Р., Розенфельд А. *Квантовая электроника*, **40**, 966 (2010).
13. Dyukin R.V., Martsinovskiy G.A., Sergaeva O.N., Shandybina G.D., Svirina V.V., Yakovlev E.B. In: *Laser Pulses – Theory, Technology and Applications*. Ed. by I.Peshko (Rijeka: InTech, 2012, ch. 7).
14. Гуров К.П. *Основания кинетической теории* (М.: Наука, 1966).
15. Ашкрофт Н., Мермин Б. *Физика твердого тела* (М.: Наука, 1979).
16. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. *Квантовая механика. Нерелятивистская теория* (М.: Наука, 1989).
17. Басс Ф.Г., Гуревич Ю.Г. *Горячие электроны и сильные электромагнитные волны в плазме полупроводников и газового разряда* (М.: Физматлит, 1975).
18. Вейко В.П., Либенсон М.Н., Червяков Г.Г., Яковлев Е.Б. *Взаимодействие лазерного излучения с веществом. Силовая оптика* (М.: Физматлит, 2008).
19. Белоцерковский О.М. *Численное моделирование в механике сплошных сред* (М.: Наука, 1984).
20. Gasparov V.A., Huguenin R. *Adv. Phys.*, **42**, 393 (1993).
21. Иногамов Н.А., Петров Ю.В. *ЖЭТФ*, **137**, 505 (2010).