

СИЛЬНОЕ ВОЗБУЖДЕНИЕ ЭЛЕКТРОННОЙ ПОДСИСТЕМЫ ЗОЛОТА УЛЬТРАКОРОТКИМ ЛАЗЕРНЫМ ИМПУЛЬСОМ И ПРОЦЕССЫ РЕЛАКСАЦИИ ОКОЛО ТЕМПЕРАТУРЫ ПЛАВЛЕНИЯ

Н. А. Иногамов^{a,b,c}, В. А. Хохлов^{a,c}, С. А. Ромашевский^c, Ю. В. Петров^a,
М. А. Овчинников^c, С. И. Ашитков^c*

^a *Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау
Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

^b *Всероссийский НИИ автоматики им. Н. Л. Духова, Росатом
127030, Москва, Россия*

^c *Объединенный институт высоких температур Российской академии наук
125412, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 15 сентября 2023 г.,
после переработки 9 октября 2023 г.
Принята к публикации 10 октября 2023 г.

Фемтосекундные импульсы широко используются в научных исследованиях и современных технологиях. При воздействии на металлы ультракороткое оптическое лазерное воздействие формирует выраженное двухтемпературное состояние с горячими электронами: $T_e \gg T_i$, где T_e и T_i — температуры электронной и решеточной подсистем. Представлены экспериментальные измерения, выполненные с помощью техники фазочувствительного или синхронного детектирования (lock-in) на объемной и пленочной (толщина 100 нм) мишенях из золота. Благодаря тому, что в наших опытах частота повторений нагревающих импульсов снижена до 31 Гц, нам удалось достичь температур около температуры плавления золота. Это происходит на выходе из двухтемпературной стадии в объемных мишенях. Как известно, по окончании этой стадии температуры сближаются, $T_e \approx T_i$. В объемных мишенях при наибольших достигнутых нами флюенсах пиковая электронная температура повышается до значений около 20 кК. Теоретические расчеты, имеющиеся в литературе, дают определенные зависимости для параметра электрон-фононного взаимодействия α и коэффициента электронной теплопроводности κ — ключевых параметров, характеризующих двухтемпературную стадию. Наши опыты показали, что в диапазоне флюенсов с пиковыми температурами T_e выше 10 кК и до 20 кК измеренные значения α и κ существенно ниже тех значений, которые дают теории. Ниже этого диапазона флюенсов, т. е. когда пиковые T_e меньше 10 кК, измеренные нами значения согласуются с прежними данными. Это первый результат статьи. Кроме того, показано, что на однотемпературной стадии, когда тепловая энергия, запасенная в электронах, весьма мала, имеется значительное влияние принципиально двухтемпературного коэффициента α на теплоотвод из скин-слоя. Это связано с относительно малой толщиной прогретого слоя, которая в золоте составляет величину порядка 200–300 нм.

DOI: 10.31857/S0044451024020032

1. ВВЕДЕНИЕ

Фемтосекундные (фс) лазерные системы представляют собой незаменимый инструмент для исследований в науке [1–4] и в технологиях обработки материалов [5–9]. Соответственно изучение взаимодействия фс-излучения с веществом ведется широким фронтом и уже продолжительное время [10–18].

* E-mail: nailinogamov@gmail.com

Тем не менее многие проблемы сохраняют свою актуальность.

Физика фс-воздействия делится на две основные части (ограничимся случаем металлов и оптического возбуждающего облучения.) В первой части исследуется возбуждение электронов конденсированной среды и релаксация возбужденных состояний. Во второй части анализируются последующие явления, имеющие место уже в термодинамически равновесной среде. С одной стороны, рассматриваются переход конденсированного вещества в неравновесное состояние и релаксация к термодинамическому равновесию. С другой стороны, анализируются последствия сверхбыстрого нагрева уже в равновесных состояниях.

В свою очередь, первая часть делится на два раздела по степени возбуждения. Это кнудсеновские и гидродинамические течения. В первый (кнудсеновский) раздел целесообразно отнести слабые воздействия, а во второй — сильные воздействия (гидродинамика). Чем они различаются? Различие между ними заключается во времени релаксации t_{e-e} электронной подсистемы. При слабом возбуждении время t_{e-e} превышает длительность лазерного импульса τ_L и становится сопоставимым со временем релаксации t_{eq} .

Ограничимся случаем золота и фс-импульсов, когда время t_{eq} составляет единицы и десятки пикосекунд и существенно превосходит длительность τ_L . На временах меньше масштаба t_{e-e} фермиевское распределение в электронной подсистеме еще не установилось [19, 20]. Для установления термодинамического равновесия электронов необходимо несколько электрон-электронных столкновений. Слабые возбуждения происходят от слабых воздействий, поскольку время свободного пробега между электрон-электронными столкновениями, $t_{e-e} \propto 1/T_e^2$ [21], убывает с поглощенной энергией F_{abs} . Дело в том, что $t_{e-e} \propto 1/E_e$ вследствие того, что $E_e \propto T_e^2$, где E_e — энергия электронов.

Далее в тексте будут представлены опыты и расчеты со слабыми и достаточно сильными нагревами. Они относятся к кнудсеновскому и гидродинамическому случаям.

Ситуацию на временах $t < t_{e-e}$ необходимо описывать с помощью кинетического уравнения [19, 20]. При этом число Кнудсена $Kn \sim 1$. Число Kn характеризует переход от неравновесного к равновесному случаю. Оно равно отношению длины свободного пробега к характерному пространственному масштабу, $Kn = l_{mfp}/L$, или оно равно отношению продолжительности свободного пробега к характерно-

му временному масштабу, $Kn = t_{mfp}/t_{eq}$. Работа с кинетическим уравнением в пространственно-неоднородной среде является сложной.

В аэродинамике разреженного воздуха для упрощения решения кинетического уравнения Больцмана создан метод Чепмена–Энскога [22]. Это направление связано с аппроксимацией кинетического уравнения Больцмана в виде разложения по степеням малого параметра, которым считается число Kn . Первым приближением по числу Kn является уравнение Навье–Стокса. Для конденсированной среды с возбужденными электронами таких аналогов к настоящему времени еще не создано. В такого рода среде имеются подходы к решению кинетического уравнения в пространственно-однородном случае (тонкие пленки) [19, 20].

К существенному упрощению решений в неравновесном случае приводит подход с разделением на электронную (e) и ионную (i) подсистемы [10, 23]. В равновесном случае термодинамическая система характеризуется одной температурой. В подходе работ [10, 23] температур две — это отдельные температуры T_e и T_i для электронов и решетки — двухтемпературное (2Т) приближение. 2Т-приближение опирается на то обстоятельство, что установление равновесия между подсистемами длится дольше, чем установление равновесия внутри e - и i -подсистем.

2Т-подход имеет смысл, если время установления равновесия в электронной подсистеме мало,

$$t_{e-e} \ll t_{eq}. \quad (1)$$

Выравнивание температур T_e и T_i происходит за время t_{eq} . Понятно, что для выполнения неравенства (1) поглощенная энергия F_{abs} должна быть достаточно большой. Насколько большой? Грубые оценки дают пороговое значение $F_{abs} \sim 1$ мДж/см². Ниже в статье на базе опытов и расчетов мы уточним данное положение.

В наших опытах и расчетах мишень из золота до воздействия находится при комнатной температуре, т.е. нагрета выше дебаевской температуры золота $\Theta = 170$ К. В термодинамическом равновесии при $T > \Theta$ основной вклад в решеточную теплоемкость связан с фононными модами с волновыми векторами $k \sim k_D$ возле границы зоны Бриллюэна. Подчеркнем, что в 2Т-состояниях ($T_e \gg T_i$) практически весь поток передаваемой электронами энергии направляется в те же коротковолновые моды [24].

Заменим зону Бриллюэна на сферу. Радиус этой сферы в пространстве волновых векторов равен $k_D = (6\pi^2 n_{at})^{1/3}$, где n_{at} — концентрация атомов.

Длина волны $\lambda_D = 2\pi/k_D = 0.2$ нм. Фонон-фононное взаимодействие обусловлено ангармонизмом кристаллического потенциала. Оценим частоту ν_{p-p} фонон-фононных столкновений по решеточной теплопроводности:

$$\kappa_{lat} \sim (1/3) c_{lat} c_s^2 / \nu_{p-p}.$$

Отсюда $\nu_{p-p} \simeq 7 \cdot 10^{12} / \kappa_{lat} \text{ с}^{-1}$, где κ_{lat} выражается в единицах измерения СИ. Соответственно время свободного пробега фонона $1/\nu_{p-p}$ между столкновениями порядка 100–200 фс при $\kappa_{lat} \sim 1 \text{ Вт/К/м}$. Приведенная оценка следует из молекулярно-кинетической теории. В ней c_{lat} и c_s — теплоемкость решетки и скорость звука соответственно. Понятно, что для термализации дальнего хвоста распределения Ферми и термализации длинноволновых фононов требуется много соответственно электрон-электронных и фонон-фононных столкновений. Но энергии в обоих этих хвостах мало, поэтому их наполнение относительно малосущественно.

Оценим длину пробега электрона l_{mfp} в золоте при комнатной температуре. Пробег l_{mfp} называют также баллистической длиной. Частота столкновений электрона, оцененная с помощью формулы Друде по электрическому сопротивлению, порядка 10^{14} с^{-1} . При комнатной температуре частота столкновений определяется рассеяниями на фононах. Если скорость Ферми оценить как $v_F \sim 10^8 \text{ см/с}$, то мы получим $l_{mfp} \sim 10^{-6} \text{ см} \sim 10 \text{ нм}$, т.е. порядка 30 межатомных промежутков. С ростом электронной и/или ионной температур выше комнатной температуры частота столкновений увеличивается, соответственно баллистическая длина уменьшается. В кнудсеновском режиме толщина пленки порядка баллистической длины.

Поговорим теперь об экспериментальной ситуации. Облучение (возбуждение/нагрев (pump)) и диагностика (зондирование (probe)) являются важнейшим pump-probe-методом прямого слежения за происходящим вследствие фс-облучения [25]. Другими словами — это измерения терморефлектанса (transient thermo reflectivity, TTR [26]). Принцип простой. Облучение («термо») возбуждает электронную подсистему. В результате возбуждения меняются оптические характеристики. Диагностические импульсы нужны для того, чтобы определять эволюцию (поэтому «transient») во времени измененных оптических характеристик, например, вариацию коэффициента отражения (эволюция рефлектанса).

В первых работах конца 80-х начала 90-х годов энергетика фс-лазеров была слабой [11–14], см. также [27]. Облучение (pump) вызывало столь малое отклонение от комнатного значения, что диагностический сигнал тонул в шумах. Поэтому измерения велись в режиме накопления полезного сигнала — методика lock-in [12–14]. При этом на мишень подавалась последовательность $N \gg 1$ четверок (по две пары) лазерных импульсов.

Первая пара в четверке состояла из пропущенного нагревающего импульса (нет pump-импульса) и диагностического (probe) импульса. Таким образом, первая пара измеряла и запоминала в памяти устройства невозмущенное значение коэффициента отражения R_0 . Во второй паре, относящейся к той же четверке, были и греющий (pump), и диагностический (probe) импульсы. Измерялось и запоминалось измененное значение коэффициента отражения R' . В серии из N четверок разнесение во времени греющего и диагностического импульсов t_{delay} и амплитуда греющего импульса были строго фиксированы. Амплитуда диагностического импульса пренебрежимо мала.

Изменение ΔR коэффициента отражения, $\Delta R = R' - R_0$, флуктуирует из-за шумов. При большом количестве импульсов $N \gg 1$ вариация ΔR сходится к среднему $\langle \Delta R \rangle$. При этом относительная погрешность убывает пропорционально $1/\sqrt{N}$.

В следующих сериях менялось время t_{delay} задержки между греющим и диагностическим сигналами. Таким образом определялась эволюция во времени $\langle \Delta R \rangle(t_{delay})$ возбужденной системы после греющего импульса фиксированной амплитуды [12–14, 28]. При изменении параметров греющего импульса (амплитуда, длительность) меняется и эволюция.

Промежуток времени t_4 ($t_4 \gg t_{delay}$) между последовательными четверками должен быть достаточно продолжительным. Это необходимо для того, чтобы за время t_4 гарантировать остывание вещества и возвращение мишени к исходному состоянию с коэффициентом R_0 . В противном случае вещество в пятне облучения деградирует в режиме усталостного разрушения [27, 29]. Усталостная деградация ограничивает сверху амплитуду греющего (pump) импульса в методике lock-in. Понятно, что время остывания t_4 после воздействия pump-импульса растет вместе с амплитудой этого импульса.

С течением времени разрабатывались новые лазерные системы, и энергетика фс-воздействия усиливалась. При достаточно мощной энергетике уже в 90-е гг. оказалось возможным отказаться от пред-

ставленного выше сложного режима lock-in с многими повторами ($N \gg 1$) импульсов высокой стабильности. Измеряемое значение ΔR стало определяться в одной паре греющего (pump) и диагностического (probe) импульсов, т.к. величина ΔR являлась довольно большой [25,30,31]. Варьируя задержку t_{delay} между импульсами, можно найти зависимость $\Delta R(t)$. Отметим, что сильное одиночное воздействие необратимо меняет характеристики вещества мишени в пятне воздействия. Поэтому следующий лазерный выстрел необходимо направлять в новое, необлученное место на поверхности мишени.

Также была разработана техника спектральной интерферометрии, с помощью которой в одном опыте с одним греющим импульсом сразу определяется зависимость $\Delta R(t)$ [32,33]. При этом с одиночным греющим фс-импульсом синхронизован длинный (субнаносекундный) частотно модулированный диагностический (probe) импульс, различные спектральные компоненты которого прибывают на мишень с разными временами задержки t_{delay} .

Таким образом, техника lock-in (II) и техника с одиночным диагностическим импульсом (I) дополняют друг друга. Благодаря II можно работать со слабыми импульсами, когда точности техники I не хватает. Наоборот, благодаря I снимается лимит сверху на амплитуду воздействия. Как сказано выше, появление лимита обусловлено деградацией мишени из-за накопления повреждений и/или постепенной аккумуляции тепла.

В перечисленных выше экспериментах нагрев и зондирование проводятся оптическими импульсами. Иногда это гармоники основной частоты. Скажем, нагрев проводится на второй гармонике, а зондирование — на первой, см. пример в работе [27]. Имеются более сложные схемы с синхронизацией во времени прихода на мишень разного рода импульсов. Проводятся pump-probe-исследования с оптическим (pump) и неоптическим (probe) импульсами. С помощью мягкого рентгеновского излучения строят изображения того, как происходит развитие купола [34] при отделении (блистеринге) от подложки тонкой пленки в пятне облучения. Для диагностики используются кольца Ньютона и сдвиги интерференционных полос [34] в лучах лазера на длине волны 13.9 нм. Путем дифракции на меняющейся во времени решетке кристалла изучают изменения структуры кристалла в результате фс-воздействия. В таких работах для дифракции в качестве диагностического (probe) импульса используется жесткое рентгеновское излучение [35] или электронный пучок [36].

Вернемся к чисто оптическим pump-probe-методикам. Первые исследования специфики протекания процессов, вызванных фс-импульсом, во-первых, опирались на аппаратуру lock-in и, во-вторых, ставили целью описание электрон-фононной релаксации [12–14]. Такая релаксация длится пикосекунду(ы). При этом пятно освещения pump-импульса гораздо шире пятна освещения probe-импульса. Это необходимо для исключения эффектов неоднородности.

Настоящая революция произошла в конце 90-х годов. Во-первых, как сказано выше, возросла энергетика фс-лазера (поэтому удалось превысить порог наноткола). Во-вторых, исследователи в своем слежении за процессами, инициированными фс-воздействием, стали охватывать намного более продолжительный интервал времен (t_{delay} — до единиц и десятков наносекунд [30]; см. также работу [37] о рекордных длительностях наблюдения). В-третьих, размер пятна probe-импульса стал больше пятна pump-импульса [30].

Эти три обстоятельства позволили наблюдать кольца Ньютона с растущим во времени числом колец. Указанные обстоятельства суть: превышение порога; длительность наблюдения, достаточная для того, чтобы откольная оболочка прошла путь, сопоставимый с длиной волны probe-импульса; широкое поле обзора probe-фотографии, покрывающее всю область откольной оболочки.

Полученные данные позволили заявить о новом (не испарение) характере течения, порожденном фс-воздействием [30,38,39]. Оказалось, что фс-воздействие приводит к нанотколу [38,39] вместо привычной (для более длительных импульсов) испарительной абляции. Эквивалентно вместо терминов откол или нуклеация/кавитация говорят о термомеханической абляции [38,39] или об инерционном удержании (stress confinement) [40]. В ранних исследованиях электрон-фононной релаксации [12–14] гидродинамические эффекты были пренебрежимо малы; в этих работах применялась техника lock-in, нагревы были слабыми, намного ниже порога термомеханической абляции.

Завершим на этом обзор по физике ультракоротких лазерных воздействий. Работа построена следующим образом. В разд. 2–7 представлена общая картина. Говорится о том, что на ранней стадии в объемных мишенях охлаждение электронной подсистемы в скин-слое обусловлено в основном выносом электронной энергии из скин-слоя посредством электронной теплопроводности (разд. 2–5). При этом на данной стадии передача энергии от

электронов фононам играет второстепенную роль (разд. 6 и 7).

В разд. 8 и 9 представлена использованная экспериментальная техника и описаны основные результаты. Именно эти результаты послужили основой для последующей теоретической обработки. Дело в том, что представленный выше метод TTR позволяет получить экспериментальные данные для относительного изменения коэффициента отражения $\Delta R(t)/R_0$ со временем в течение и после ультракороткого лазерного воздействия. Это косвенный метод: по кривой $\Delta R(t)/R_0$ необходимо судить о состоянии конденсированной среды с возбужденными электронами. Для пересчета кривой в параметры, характеризующие систему, необходимо иметь численную реализацию адекватной физической модели.

В разд. 10 и 11 разъясняются использованные нами физические методики: расчет коэффициента теплопроводности приводится в разд. 10, оптическая модель дается в разд. 11. В заключительном разделе подведены итоги работы.

2. ДОМИНИРОВАНИЕ ЭЛЕКТРОННОГО ТЕПЛОТВОДА В ОБЪЕМНЫХ МИШЕНЯХ

В работе приводятся данные lock-in-измерений для пленочной и объемной мишеней. Сравнение TTR в случае этих двух типов мишеней приведено на рис. 1. В объемных мишенях на 2Т-стадии охлаждение электронной подсистемы в скин-слое (т.е. снижение поверхностной температуры $T_e|_{surf}$) обусловлено главным образом передачей электронной энергии E_e из скин-слоя в объем посредством электронного теплового потока

$$q = -\kappa \nabla T_e, \quad (2)$$

где κ — коэффициент теплопроводности. При этом на данной стадии передача энергии E_e в фононную подсистему мало сказывается на темпе снижения температуры T_e в скин-слое.

Наоборот, в пленке поток (2) подавлен геометрически из-за ультрамалой толщины пленки — в наших опытах толщина пленки равна $d_f = 100$ нм. Охлаждение в такой пленке связано с передачей энергии из электронной подсистемы (энергия E_e) в ионную подсистему (энергия E_i). Удельная (на единицу объема) мощность

$$\dot{E}_{ei} = \dot{E}_e - \dot{E}_i$$

обмена энергией между указанными подсистемами равна (обычно в единицах Вт/м³)

$$\dot{E}_{ei} = \alpha(T_e - T_i), \quad (3)$$

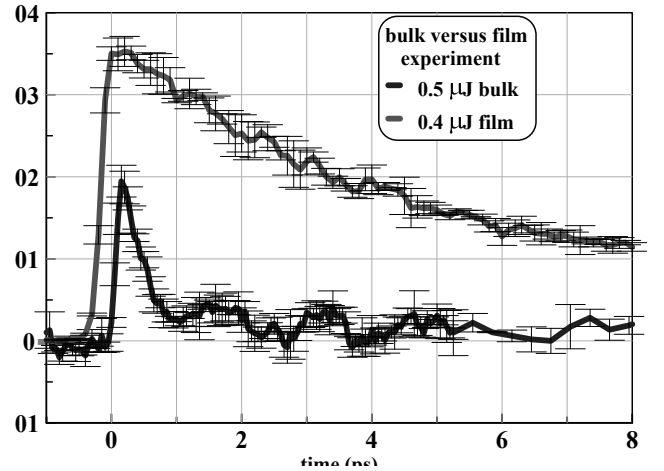


Рис. 1. (В цвете онлайн) Сравнение TTR (т.е. $\Delta R/R_0$) в пленочной и объемной мишенях; $\Delta R = R(t) - R_0$, R_0 — значение коэффициента отражения probe-импульса с $\lambda = 800$ нм при комнатной температуре. Указаны энергии соответствующих лазерных рипр-импульсов, (см. разд. 8, посвященный описанию проведенных нами опытов). Как видно, в пленке электрон-ионная релаксация происходит намного медленнее. В пленке и в объемной мишени механизмы снижения поверхностной электронной температуры $T_e|_{surf}$ разные. В пленке снижение $T_e|_{surf}$ (и соответственно TTR) происходит из-за обмена (3), тогда как в объемной мишени доминирует охлаждение за счет электронного теплового потока (2), см. пояснения в тексте

где α — коэффициент электрон-фононного обмена.

Приведем оценки, поясняющие ситуацию, показанную на рис. 1. Пересчет энергии рипр-импульса (указана в рамке на рис. 1 в мкДж) сначала во флюенс падающего излучения F_{inc} , а затем в поглощенную энергию F_{abs} дает значения F_{abs} , равные 3.4 мДж/см² для пленки и 3.7 мДж/см² для объемной мишени. В наших опытах измеряется количество отраженной энергии рипр-импульса. Из этих измерений коэффициент поглощения A на длине волны рипр-импульса 400 нм под углом 45° при p -поляризации получается равным 0.7 и 0.8 для объема и пленки соответственно. Отсюда следуют приведенные значения F_{abs} . Отметим, что для угла 45° литературные данные по A варьируют в пределах от 0.7 до 0.75, см. <https://refractiveindex.info/>. Отметим, что толщина пленки золота (100 нм) такова, что энергией излучения, прошедшей через пленку, можно пренебречь.

Если распределить поглощенную энергию $F_{abs} = 3.4$ мДж/см² в электронной подсистеме на толщине $d_f = 100$ нм, то электроны нагреются от комнатной температуры $T_{rt} = 293$ К до 3600 К. При подсчете принято, что приращение удельной

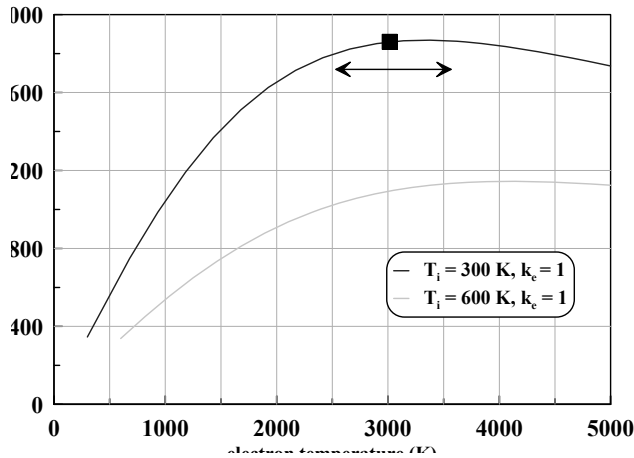


Рис. 2. (В цвете онлайн) Зависимости коэффициента теплопроводности κ золота в твердой фазе при нормальной плотности 19.3 г/см^3 от температур T_e и T_i . Для оценки (4) полагаем, что нагрев ионной подсистемы в поверхностном слое мал, т.е. $T_i \approx 300 \text{ К}$. Среднее значение $\kappa \approx 1900 \text{ Вт/К/м}$ на отрезке изменения температуры T_e от 3600 до 2600 К. Указанный отрезок температур T_e выделен двусторонней горизонтальной стрелкой. Описанию модели, посредством которой вычисляется коэффициент κ , посвящен разд. 10

электронной энергии равно

$$E_e = \frac{\gamma}{2}(T_e - T_{rt})^2 = \frac{F_{abs}}{d_f}.$$

Согласно теории ферми-газа для золота коэффициент $\gamma = 63 \text{ Дж/К}^2/\text{м}^3$.

В объемной мишени оценка энергии на единицу площади, вынесенной тепловым потоком из поверхностного слоя толщиной $d_f = 100 \text{ нм}$ за время t_{cool} , имеет вид

$$Q_{ehc} = (\kappa \Delta T_e / d_f) t_{cool}. \quad (4)$$

Здесь индекс «ehc» означает «электронная теплопроводность» (electron heat conduction). Для оценки необходимо принять значения κ , ΔT_e и t_{cool} , которые относятся к экспериментальной ситуации, показанной на рис. 1. Нас интересует случай объемной мишени, представленный синей кривой на рис. 1.

Разность температур $T_{e|surf}$ в выражении (4) возьмем от максимальной, равной примерно 3600 К, до температуры в $\sqrt{2}$ раз меньшей. При этом электронная энергия E_e слоя уменьшится в два раза, поскольку $E_e \propto T_e^2$. На 2Т-стадии амплитуда ТТР-сигнала $\Delta R(t)/R_0$ примерно пропорциональна $(T_{e|surf})^2$. Поэтому за время охлаждения электронной подсистемы t_{cool} примем отрезок времени на полувысоте пика синей кривой на рис. 1. Это соответствует примерно 500 фс.

Указанная разность температур поверхности отмечена горизонтальным отрезком на рис. 2. В оцен-

ку (4) подставляем $\kappa \approx 1900 \text{ Вт/К/м}$. Коэффициент теплопроводности κ в разработанной нами теории составлен из электрон-электронного и электрон-ионного (рассеяние на фононах) вкладов. Коэффициент κ представлен на рис. 2. Электрон-электронный вклад в κ выберем согласно работе [41]. Электрон-фононный вклад вычисляется в соответствии с работой [42].

Подставляя в выражение (4) принятые значения $\kappa \approx 1900 \text{ Вт/К/м}$, $\Delta T_e = 1000 \text{ К}$ и $t_{cool} = 0.5 \text{ пс}$, получаем $Q_{ehc} = 1 \text{ мДж/см}^2$, т.е. за время t_{cool} электронный тепловой поток (2) уносит из поверхностного слоя в объем более четверти поглощенной энергии $F_{abs} = 3.7 \text{ мДж/см}^2$.

Сильнейшее электронное охлаждение за счет теплопроводности существенно снижает пиковое значение ТТР на рис. 1 уже на промежутке времени поглощения энергии рупр-импульса. В наших экспериментах длительность рупр-импульса была довольно значительной: 150–200 фс. Это обстоятельство объясняет разность высоты ТТР-пиков объемной и пленочной мишеней на рис. 1.

Теперь оценим темп охлаждения электронной подсистемы пленки толщиной $d_f = 100 \text{ нм}$. Соответствующая зависимость ТТР показана красной кривой на рис. 1. Такая оценка позволит нам определить величину коэффициента электрон-фононного обмена α в формуле (3).

В соответствии с формулой (3) запишем

$$\Delta E_{ei} = \alpha T_e d_f t_{cool-film}. \quad (5)$$

В (5) величина ΔE_{ei} дает снижение энергии, запасенной в пленке, за время охлаждения пленки $t_{cool-film}$. Величина ΔE_{ei} относится к единице площади пленки. Снижение происходит за счет передачи энергии в решеточную подсистему. В (5) в разнице температур из формулы (3) пренебрегаем ионной температурой T_i .

Возьмем обычно принимаемое значение коэффициента электрон-фононного обмена

$$\alpha = 0.2 \cdot 10^{17} \text{ Вт/К/м}^3. \quad (6)$$

Эта величина соответствует значению коэффициента электрон-фононного обмена для золота при малых нагревах. Примем за T_e в (5) среднюю температуру 3100 К на отрезке снижения температур от 3600 до 2600 К. Эти температуры определяются из закона сохранения энергии по поглощенной энергии и фермиевского выражения для плотности электронной энергии, см. выше. Согласно красной кривой на

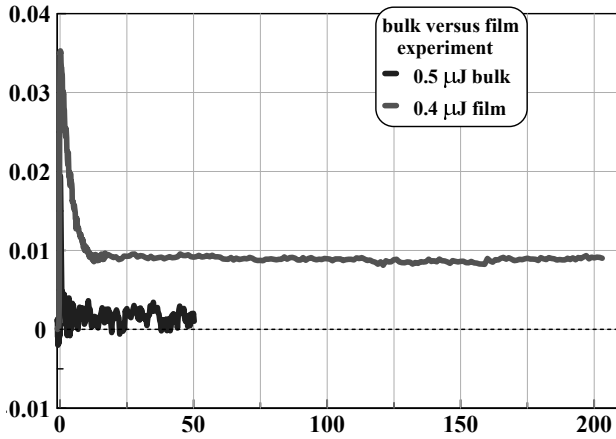


Рис. 3. (В цвете онлайн) Штриховая горизонталь соответствует $\Delta R = 0$, т.е. возвращению коэффициента отраженияprobe-импульса на комнатное значение. Как видим, температура пленки примерно в 4–5 раз выше температуры поверхности объемной мишени. Дело в том, что пленка нанесена на подложку из стекла. Теплопроводность стекла намного меньше теплопроводности золота. По ΔR мы судим о температуре, поскольку на однотемпературной (1Т) стадии отклонение ΔR примерно пропорционально температуре. Опыты, с помощью которых получены кривые TTR, описаны в разд. 8 и 9

рис. 1 длительность промежутка времени на высоте пика равна примерно 4.5 пс. Примем это время за время охлаждения $t_{cool-film}$ в выражении (5). Подставляя эти значения в выражение (5), находим, что $\Delta E_{ei} = 2.8$ мДж/см². Это значение примерно равно поглощенной пленкой энергии 3.4 мДж/см².

Для нашей пленки с $d_f = 100$ нм поглощенная энергия $F_{abs}|_{lim} = 3.4$ мДж/см² является предельной, т.е. не удастся провести измерения TTR при значениях F_{abs} , превышающих этот предел. Это обусловлено отсутствием теплоотвода в объем, который охлаждает поглощающую поверхность. На рис. 3 показаны продленные по времени (по сравнению с рис. 1) зависимости TTR. Понятно, что ультратонкая пленка на стекле охлаждается в промежутке времени t_4 между рипр-импульсами намного меньше, чем объемная мишень из золота; теплопроводность стекла на два порядка ниже теплопроводности золота. Поэтому предел $F_{abs}|_{lim} \approx 60$ мДж/см² гораздо выше для объемной мишени.

Таким образом, к сожалению, нет возможности сравнивать TTR на пленочной и объемной мишенях при более сильных нагревах $F_{abs} > 3.4$ мДж/см², как это сделано на рис. 1. В диапазоне энергий $3.4 < F_{abs}$ [мДж/см²] < 60 придется ограничиться данными, полученными на объемных мишенях.

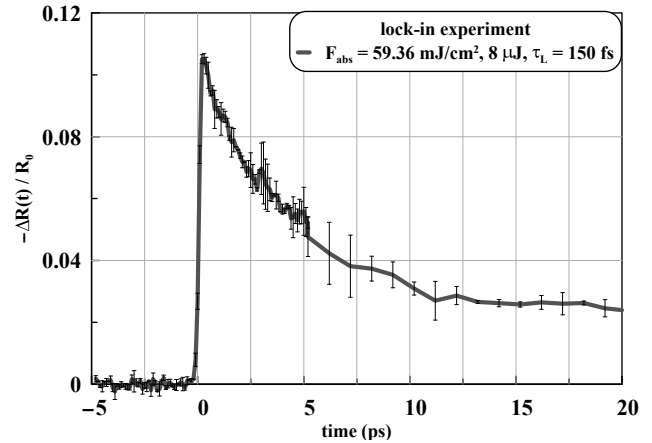


Рис. 4. То же, что на рис. 3 для объемной мишени, но при поглощенной энергии F_{abs} в 16 раз больше. Схема, иллюстрирующая взаимосвязь временных зависимостей интенсивности $I(t)$ рипр-импульса и TTR, представлена на рис. 5

Два основных вывода, которыми следует завершить данный раздел, следующие.

Во-первых, в объемных мишенях на 2Т-стадии охлаждение скин-слоя обусловлено в основном электронной теплопроводностью.

Во-вторых, теоретические значения для коэффициентов κ (см. рис. 2) и α (6) пригодны для описания эксперимента. Ниже будет показано, что при поглощенных энергиях выше примерно 30 мДж/см² теоретические значения этих коэффициентов становятся непригодными для описания опытов.

Из дальнейшего изложения будет ясно, что тезис об определяющей роли электронного теплового потока сохраняется при сильных нагревах. Это имеет место для случая объемной мишени, для 2Т-стадии и для случая, когда энергия существенно выше предела $F_{abs} = 3.4$ мДж/см² «прогорания» пленки золота толщиной 100 нм на частоте повторения рипр-импульсов в несколько десятков–сотен гигагерц в технике lock-in.

3. ОПРЕДЕЛЯЮЩАЯ РОЛЬ ЭЛЕКТРОННОЙ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ

На рис. 4 показана начальная часть (полное наблюдение продолжалось до 350 пс) экспериментальной зависимости TTR для объемной мишени. Данные собраны на пределе «прогорания» для объемной мишени. Удалось получить эти результаты при рекордном значении поглощенной энергии F_{abs} . Рекорд был достигнут благодаря сверхнизкой частоте $1/t_4 = 31$ Гц следования импульсов в технике lock-in — см. разд. 1.

Максимум зависимости TTR на рис. 4 смещен относительно максимума временного хода интенсивности

$$I(t) \approx I_0 \exp(-t^2/\tau_L^2)$$

примерно в область перегиба аппроксимации Гаусса на нисходящем крыле функции Гаусса, см. рис. 5. При плохом теплоотводе и малом значении коэффициента α , определенного в формуле (3), точка M на рис. 5 смещается вправо относительно точки $t = 0$, вниз по нисходящему крылу. И наоборот, при быстром теплоотводе и медленном вводе лазерной энергии в слой поглощения (скин-слой) точка M смещается влево. Участок от начала облучения и до максимума TTR обозначен цифрой 1 на рис. 5.

Оценки и численное моделирование 2Т-гидродинамическим кодом показывают, что спад электронной температуры поверхности $T_{e|surf}$ и TTR на участке 2 на рис. 5 происходит в основном за счет электронной теплопроводности. В этом отношении случай с сильным нагревом, рассматриваемый здесь, не отличается от случая со слабым нагревом, рассмотренным в разд. 2.

Постепенно по мере снижения TTR и температуры $T_{e|surf}$ темпы охлаждения поверхности за счет теплопроводности κ и за счет теплопередачи в решетку α сравниваются. Это происходит на заключительном участке 3 2Т-стадии на рис. 5. На этом переходе от 2Т-стадии к однотемпературной (1Т) стадии (когда $T_e \approx T_i$) $T_{e|surf}$ все еще существенно выше $T_{i|surf}$.

Номинально участок 4 на рис. 5 — это 1Т-участок теплового течения, поскольку локально по объему мишени температуры $T_e(x, t)$ и $T_i(x, t)$ примерно равны. На самом деле 2Т-эффект здесь скрыто присутствует. Теперь температура $T_{e|surf}$ немного меньше, чем температура $T_{i|surf}$. Такое условие обеспечивает продолжение охлаждения поверхности на 1Т-стадии. Как будет показано ниже, только при правильном выборе чисто 2Т-коэффициента α обеспечивается верный временной ход снижения температуры поверхности, а значит, и TTR на участке 4. Поэтому участок 4 называется скрытым 2Т-участком (latent presence of α).

В данном разделе мы будем в основном анализировать участок 2 на рис. 5. Необходимо понять, каким образом происходит пространственное распространение поступающей и уже поступившей в скин-слой радиационной энергии. Повторим оценки, которые применялись в разд. 2 при малых радиационных потоках. Эти оценки основаны на законе сохранения энергии, уравнении теплопроводности и урав-

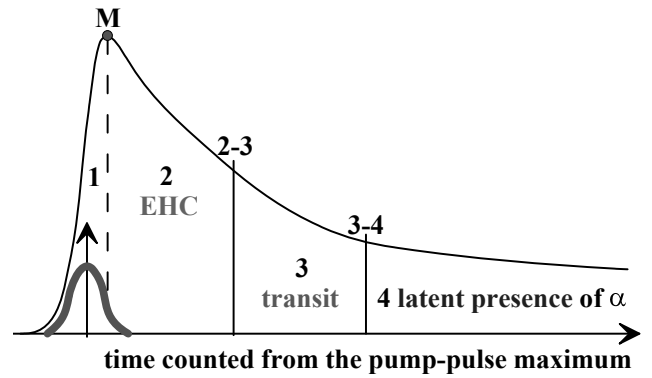


Рис. 5. (В цвете онлайн) Pump-импульс показан красным бугорком, его максимум достигается в момент времени $t = 0$. Данная схема поясняет характерные участки 1–2–3–4 временной зависимости TTR (черная кривая) и синхронизацию pump-импульса и TTR во времени (EHC — electron heat conduction)

нению, описывающем обмен энергией между электронной и ионной подсистемами.

Запишем закон сохранения энергии в виде

$$\frac{\gamma}{2} T_e^2 = \frac{F_{abs}}{d}.$$

Отсюда

$$T_e = \sqrt{2F_{abs}/d\gamma}.$$

При сильных нагревах можно пренебречь начальной комнатной температурой T_{rt} и вместо $(T_e - T_{rt})^2$ писать T_e^2 . Фиксируем энергию $F_{abs} = 59.36$ мДж/см² и возьмем $\gamma = 120$ Дж/К²/м³. Мы увеличили эффективное значение коэффициента γ по сравнению со значением, следующим из теории ферми-газа. Это необходимо, для того чтобы учесть повышение электронной теплоемкости из-за подключения электронов d -зоны золота $5d^{10}6s^1$ при значениях T_e больше 5 кК [17, 43]. Толщину слоя, принимающего радиационную энергию, нормируем как $d = d_{20} \cdot 20$ нм, где d_{20} — безразмерное отношение. Как будет видно, теплопроводность κ при высоких температурах T_e сильно подавлена. Поэтому нами выбрано значение 20 нм вместо 100 нм при слабых нагревах, см. разд. 2. Подставляя указанные значения, получаем

$$T_e = 22/\sqrt{d_{20}}, \quad (7)$$

где температура T_e дается в кельвинах. Оценка (7) согласуется с данными численного моделирования 2Т-гидрокодом. Эти данные будут приведены ниже.

Повторим оценку (4) для теплового потока, выносящего поглощенную радиационную энергию по электронной подсистеме из слоя d . Заменим в этой оценке толщину пленки d_f на толщину $20 d_{20}$ нм

и подставим вместо температуры ΔT_e температуру (7). В результате получим

$$Q_{ehc} = \kappa \sqrt{2F_{abs}/d^3\gamma} t_{cool} = 1.1 \cdot 10^{14} \kappa_{1000} t_{cool}/d_{20}^{3/2} \text{ мДж/см}^2. \quad (8)$$

Здесь t_{cool} — время охлаждения слоя d вследствие действия электронной теплопроводности, которое задается в секундах; коэффициент теплопроводности $\kappa = 1000$ записан в виде $\kappa = 1000\kappa_{1000}$ Вт/К/м. Охлаждение обусловлено передачей энергии в объем посредством теплопроводности.

Посмотрим, какое время охлаждения t_{cool}^* понадобится, чтобы вынести из слоя d всю поглощенную энергию $F_{abs} = 59.36 \text{ мДж/см}^2$. В соответствии с этим запишем

$$Q_{ehc} = F_{abs},$$

где энергия Q_{ehc} дается выражением (8). Отсюда получаем

$$t_{cool}^* = (1/\kappa) \sqrt{F_{abs} d^3 \gamma / 2} = 0.53 d_{20}^{3/2} / \kappa_{1000} \text{ пс}. \quad (9)$$

Согласно оценке (9), требуется существенное уменьшение коэффициента теплопроводности κ , чтобы замедлить вывод энергии из поверхностного слоя до 5–7 пс. Время 5–7 пс соответствует времени спада TTR на экспериментальной зависимости на рис. 4.

4. ТЕПЛОВОЙ ПОТОК

В разд. 3 приведены оценки энергии (8), переданной в объем за счет теплопроводности. На рис. 6 показаны мгновенные расчетные профили (не оценка) потока $q(x, t = 0)$ (2), полученные интегрированием 2Т-уравнений; система уравнений выписана в работах [44, 45]. Аналогичные уравнения применяются в работе [46]. Как видим, интенсивность рипр-импульса I_0 намного (в 26 раз) превосходит электронный тепловой поток $q(x = 20 \text{ нм}, t = 0) = 8.6 \cdot 10^9 \text{ Вт/см}^2$, это поток в точке b на рис. 6. Максимальной интенсивности излучения $I_0 = 2.23 \cdot 10^{11} \text{ Вт/см}^2$ соответствует красный кружок на рис. 6. Поэтому длительность охлаждения поверхности существенно превышает длительность рипр-импульса τ_L .

Отрезки ab и cd нанесены на рис. 6, чтобы оправдать выбор характерной толщины поверхностного слоя $d = 20 \text{ нм}$, принятый при оценках в разд. 3. Можно выбрать d еще меньше, но большие толщины выбирать не целесообразно, поскольку поток в

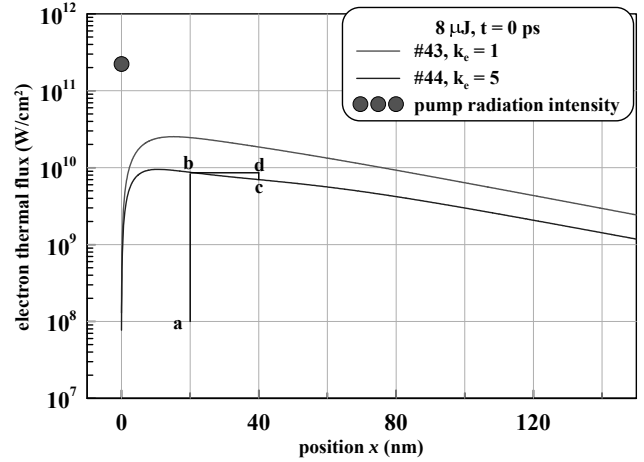


Рис. 6. (В цвете онлайн) Распределение потока (2) по пространству в момент $t = 0$, когда достигается максимум интенсивности $I_0 = \pi^{-1/2} F_{abs} / \tau_L$ поглощаемого радиационного потока $I(t)$; $\tau_L = 150 \text{ фс}$. Этот максимум отмечен красным кружком вверх. Синяя кривая относится к случаю с пятикратным (коэффициент k_e) усилением вклада в тепловое сопротивление за счет электрон-электронного рассеяния, см. разд. 5

точке b равен $8.6 \cdot 10^9 \text{ Вт/см}^2$, а изменение потока (отрезок cd) на промежутке $20 < x < 40 \text{ нм}$ равно $1.6 \cdot 10^9 \text{ Вт/см}^2$, т.е. в 5 раз меньше. Максимум потока q (2) находится на глубине примерно 10 нм.

В расчетах 43 и 44, представленных на рис. 6, применялся 2Т-гидродинамический код без учета гидродинамического движения: скорость $u(x, t) \equiv 0$, см. [44, 45]. Сравнение расчетов 42 (с гидродинамикой) и 43 (неподвижная среда) показано на рис. 7–9. Отклик TTR на воздействие рипр-импульса определяется эволюцией параметров поверхности: $T_e(t)|_{surf}$, $T_i(t)|_{surf}$ и плотности золота $\rho(t)|_{surf}$. Как видим, на временной ход температур поверхности наличие течения влияет слабо, см. рис. 7. Плотность золота на поверхности ниже на 2–3% в случае учета движения, см. рис. 8. Эти различия мало сказываются на зависимости TTR. Следовательно, при поглощенных энергиях от 60 мДж/см^2 и ниже при вычислении TTR можно не учитывать гидродинамику. Энергия 60 мДж/см^2 — это примерно четверть энергии относительно порога абляции; описание настолько высоких флюенсов требует отдельного исследования. Разумеется, возле порога абляции пренебрегать гидродинамикой нельзя.

Как было сказано выше, в нашем диапазоне энергий F_{abs} на сигнал TTR течение в мишени сказывается слабо. Однако имеется любопытная деталь. Это акустическое распространение в толщу мишени следа от кратковременного повышения электронного давления p_e на начальном отрезке 2Т-

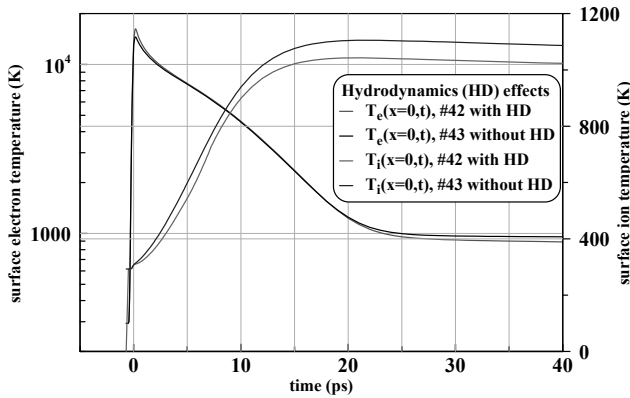


Рис. 7. (В цвете онлайн) Зависимости от времени электронной $T_e(t)|_{surf}$ и ионной $T_i(t)|_{surf}$ температур поверхности. Сравниваются результаты численного моделирования при одинаковых значениях исходных параметров. Разница в том, что в расчете 42 интегрируется полная система гидродинамических уравнений, см. [44, 45], а в расчете 43 в системе оставлены только тепловые уравнения

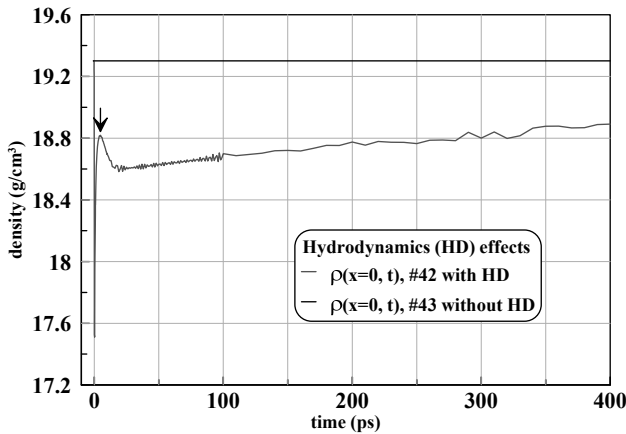


Рис. 8. (В цвете онлайн) Временная зависимость плотности золота на поверхности $\rho(t)|_{surf}$. В расчете 42 учтена гидродинамика (красная кривая). Поэтому вследствие нагрева происходит расширение (см. смещение Δ на рис. 9) и плотность уменьшается. В расчете 43 движения нет: $u \equiv 0$. Следовательно, плотность объемной мишени однородна и равна начальной плотности

стадии. Этот след в виде резкого зубца ясно виден на рис. 9. Электронное давление p_e учитывается в 2Т-уравнении состояния, которое необходимо для решения полной системы уравнений 2Т-гидродинамики [44, 45]. Уравнение состояния берется из квантовомеханических расчетов фотовозбужденного золота, см. [17].

С зубцом на рис. 9 связано резкое падение плотности на рис. 8. Координата максимума на рис. 8 равна 5.2 пс. Максимум отмечен стрелкой. Продолжительность спада плотности от момента начала действия рипр-импульса и до момента 5.2 пс обусловлено действием давления p_e . Это время корре-

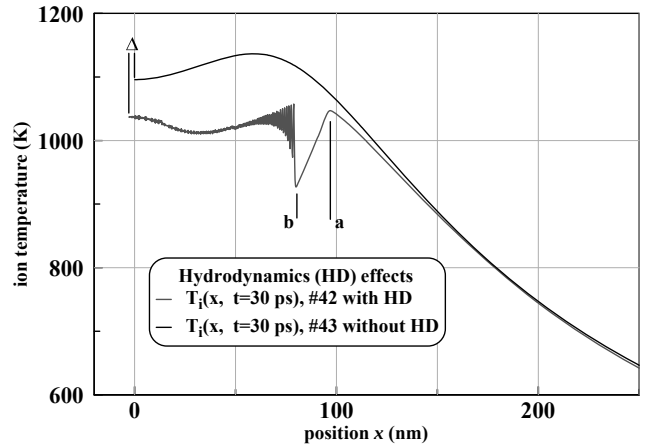


Рис. 9. (В цвете онлайн) Мгновенные пространственные профили ионной температуры на момент 30 пс. Анализируется влияние движения на профиль. Из-за движения происходит смещение границы на отрезок Δ . Яркий зубец на красной кривой обусловлен резким повышением электронного давления p_e вследствие воздействия рипр-импульса

лирует со временем спада сигнала TTR. На рис. 4 ширина пика TTR на его полувысоте равна 5–7 пс.

5. КОЭФФИЦИЕНТ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ

На рис. 6 показаны две мгновенные зависимости распределения электронного теплового потока $q(x, t)$ (2). Они относятся к разным зависимостям коэффициента теплопроводности $\kappa(T_e, T_i, \rho)$. Как говорилось выше, коэффициент κ вычислялся теоретически. Коэффициент κ находился сложением тепловых сопротивлений,

$$s = 1/\kappa, \quad s = k_e s_{ee} + s_{ei}.$$

Сопротивление s_{ee} вычислялось по физической модели, предложенной в работе [41] для алюминия, с модификацией этой модели на случай золота. Работа [41] основана на решении кинетического уравнения в тау-приближении. Сопротивление s_{ee} возникает из-за электрон-электронных рассеяний. Электрон-фононный вклад $\kappa_{ei} = 1/s_{ei}$ брался согласно работе [42] для золота в 2Т-состояниях.

Весовой множитель k_e нужен нам, для того чтобы согласовать расчетные и экспериментальные результаты. Теории соответствует значение $k_e = 1$. На рис. 10 представлены зависимости, относящиеся к красной и синей кривым на рис. 6. К красной кривой на рис. 6 относится верхняя группа из трех кривых на рис. 10. К синей кривой соответственно относится нижняя группа.

Нижняя группа из трех кривых на рис. 10 представляет случай с достаточно сильно подавленным

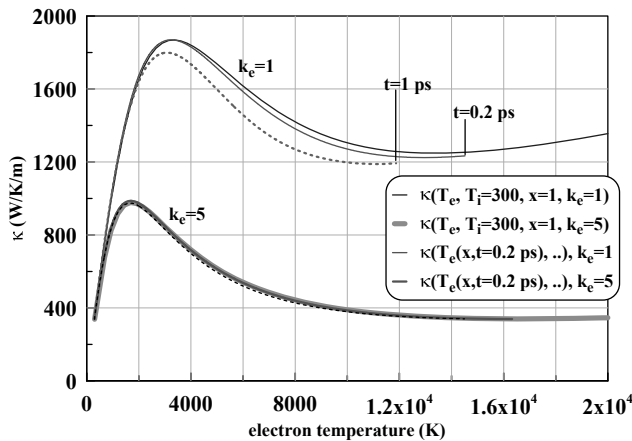


Рис. 10. (В цвете онлайн) Теоретические зависимости коэффициента теплопроводности κ от температуры T_e при фиксированных температуре $T_i = 300$ К и плотности (показаны тонкой синей и толстой зеленой кривыми). Эти кривые изображены в диапазоне температур T_e до 20 кК. Толстой и тонкой красными кривыми показаны мгновенные профили коэффициента κ на момент 0.2 пс для расчетов номер 43 и 44 соответственно. Точка окончания профиля, отмеченная вертикальным отрезком, соответствует максимуму температуры T_e на профиле на данный момент времени. С течением времени температура в максимуме снижается. Максимум достигается на границе. Моменту 0.2 пс соответствует самая высокая температура T_e поверхности. Штриховые кривые относятся к профилям на момент 1 пс

электронным вкладом в теплопроводность. Это достигается с помощью увеличения множителя k_e . Увеличение k_e приводит к усилению теплового сопротивления из-за электрон-электронного взаимодействия. При этом коэффициент теплопроводности κ уменьшается. Зависимости коэффициента κ от электронной температуры T_e представлены на рис. 10 в диапазоне температур до 20 кК. Это синяя сплошная и зеленая сплошная кривые. Зависимости от температуры T_e показаны при фиксированной ионной температуре $T_i = 300$ К и при фиксированной плотности. Плотность равна плотности золота ρ_0 при нормальных условиях. Величина $x = \rho/\rho_0$ равна плотности, нормированной на плотность ρ_0 (не следует путать обозначенное таким образом отношение плотностей с координатой). На графиках (синяя и зеленая кривые) на рис. 10 имеем $x = 1$.

При комнатных условиях теплопроводность золота равна $\kappa = 318$ Вт/К/м. Теория воспроизводит это значение. Из него начинаются синяя и зеленая зависимости на рис. 10. В 1Т-условиях величина κ слабо зависит от температуры вплоть до температуры плавления; как известно, после плавления коэффициент κ снижается в 2–3 раза. Слабая зави-

симость от температуры коэффициента κ твердого золота связана с тем, что рост частоты ν_{ei} электрон-фоонных столкновений компенсируется ростом теплоемкости электронов — переносчиков тепла. При низких температурах частота электрон-фоонных взаимодействий доминирует над частотой ν_{ee} электрон-электронных столкновений.

Понятно, что если зафиксировать температуру T_i и увеличивать температуру T_e , то коэффициент κ будет увеличиваться. Это связано с частичным снятием вырождения электронов и ростом теплоемкости на этой основе при фиксированной частоте электрон-фоонных столкновений $\nu_{ei} \propto T_i$. Этому участку зависимости 2Т-теплопроводности $\kappa(T_e, T_i, \rho)$ соответствует рост синей и зеленых кривых на рис. 10.

При дальнейшем росте температуры T_e частота ν_{ee} становится равной частоте ν_{ei} , а затем начинает ее превышать. Для грубых оценок можно принимать, что частота ν_{ee} растет пропорционально квадрату температуры T_e . Точная зависимость отклоняется от закона $\nu_{ee} \propto T_e^2$, см. [41]. Из-за этого линейный рост коэффициента κ с ростом температуры T_e при фиксированной температуре T_i прекращается. Это прекращение роста происходит примерно при температуре $T_e \approx 3.2$ кК для синей кривой и $T_e \approx 1.8$ кК для зеленой кривой, см. рис. 10.

При численном моделировании в код закладывалась теоретическая формула для коэффициента κ . В расчете 43 (44) использовался коэффициент κ со значением $k_e = 1$ ($k_e = 5$). Результаты расчетов 43 и 44 сравниваются на рис. 6 и 10. В расчете находятся функции $T_e(x, t)$ и $T_i(x, t)$. По ним определяются остальные функции, например, тепловой поток $q(x, t)$ (2), см. рис. 6, или мощность теплопередачи $\dot{E}_{ei}$ (3).

Возьмем из расчета мгновенный профиль коэффициента теплопроводности $\kappa(x, t = t_{fix})$ по пространственной переменной x . Возьмем из расчета также профиль электронной температуры $T_e(x, t = t_{fix})$ на тот же момент времени t_{fix} . Исключим из этой пары функций аргумент x . В результате получим зависимость $\kappa(T_e, t = t_{fix})$ на момент времени t_{fix} .

Именно такие параметрические профили на моменты времени 0.2 и 1 пс изображены на рис. 10. Одна пара профилей на моменты 0.2 и 1 пс относится к расчету 43, другая — к расчету 44. В выбранные моменты времени ионная температура не успела заметно измениться по сравнению с исходной; исходной (т.е. до облучения) была комнатная температура. Понятно поэтому, что указанные про-

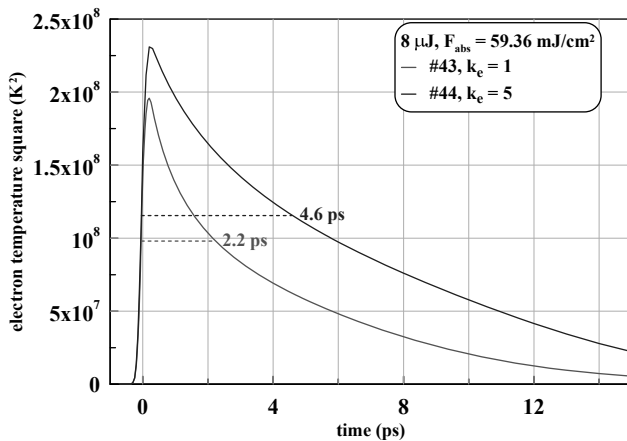


Рис. 11. (В цвете онлайн) Зависимости от времени квадрата поверхностной электронной температуры T_e . Видно, что ограничение теплового потока уширяет пик квадрата температуры примерно до соответствия экспериментальным результатам, приведенным на рис. 4. Синяя кривая относится к расчету 44 с подавленным ($k_e = 5$) коэффициентом теплопроводности κ

фили близки к температурной зависимости коэффициента теплопроводности при ионной температуре $T_i = 300$ К, принятой в расчетах 43 или 44 (выбор коэффициента k_e).

По мере роста времени t_{fix} параметрические профили на рис. 10 отходят от температурной зависимости коэффициента теплопроводности κ при ионной температуре $T_i = 300$ К. Это обусловлено ростом ионной температуры на профиле $T_i(x, t = t_{fix})$ по сравнению со значением 300 К. Сплошные параметрические кривые относятся к моменту времени 0.2 пс. Тонкая красная кривая получена из расчета 43, толстая красная кривая — из расчета 44. Кривые, показанные мелкими штрихами, представляют момент 1 пс. Малиновые штрихи — это расчет 43, а черные — расчет 44. В расчете 44 температура T_i возрастает медленнее. Поэтому разделение между параметрическим профилем, с одной стороны, и зависимостью коэффициента теплопроводности от электронной температуры, с другой стороны, происходит медленно. Если бы ионная температура на профиле оставалась равной 300 К, то разделения этих кривых не было бы.

Основные выводы данного раздела следующие.

Во-первых, электронный тепловой поток q доминирует в качестве механизма охлаждения скин-слоя при энергиях $F_{abs} \approx 60$ мДж/см². Это энергии порядка четверти от порога абляции и несколько ниже порога плавления.

Во-вторых, поток q не справляется с отводом в объем поглощаемого радиационного потока энер-

гии I , см. рис. 6. В связи с этим при указанных энергиях и длительностях импульса время остывания скин-слоя существенно превышает длительность лазерного ринг-импульса.

В-третьих, только при существенном ограничении теплового потока можно в теории добиться существенного уширения пика TTR (снижения темпа сброса энергии из скин-слоя), соответствующего эксперименту. На этом основании выбор в модели теплопроводности сделан в пользу величины множителя $k_e = 5$. Соответственно выбираем синюю кривую на рис. 6.

Чтобы обосновать третий вывод, мы приводим рис. 11. Понятно, что снижение электронного теплового потока замедлит темп спада электронной температуры на ранней стадии, когда поглощенная энергия сосредоточена почти полностью в электронной подсистеме. Как это скажется на сигнале TTR? Очевидно, пик TTR станет шире, см. рис. 4. Данные оптической модели будут приведены ниже. Здесь же ограничимся оценкой. Считаем, что форма сигнала TTR в верхней части определяется частотой электрон-электронных рассеяний ν_{ee} . Для грубой оценки можно принять, что частота $\nu_{ee} \propto T_e|_{surf}^2$. В соответствии с этим на рис. 11 приведен ход во времени квадрата температуры T_e на поверхности.

6. ЭЛЕКТРОН-ФОНОННОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ

Важную роль играет передача энергии из электронной подсистемы в ионную. Соответствующая удельная мощность дается формулой (3). Уравнение баланса энергии электронной подсистемы имеет вид [44, 45]

$$\rho_0 \frac{\partial(E_e/\rho)}{\partial t} = -\frac{\partial q}{\partial x^0} - \dot{E}_{ei} + \frac{\rho_0}{\rho} Q - p_e \frac{\partial u}{\partial x^0}. \quad (10)$$

В правой части уравнения три основных действующих члена. Это электронная теплопроводность (2), электрон-фононное тепловое взаимодействие (3) и короткодействующий ($\tau_L = 150$ фс) источник поглощаемой лазерной энергии Q . Четвертое слагаемое связано с механической работой. В рассматриваемых условиях оно мало, см. пояснения по этому поводу на рис. 7–9.

На самой начальной стадии имеет место интенсивная вспышка — член Q доминирует, см. рис. 6. Далее по времени следует стадия доминирования первого слагаемого (электронная теплопроводность, ЕНС — electron heat conduction), см. схему на рис. 5. Наконец, в конце 2Т-стадии и на всем дальнейшем

протяжении 1Т-стадии второй (2) и третий (3) члены одного порядка и дополняют друг друга в транспорте тепла в металле при относительно невысоких температурах. На этой стадии транспорт тепла осуществляют электроны, а отдача или аккумуляция энергии происходит в решеточной подсистеме, теплоемкость которой намного больше при этих температурах, чем электронная теплоемкость.

В 2Т-гидродинамическом коде используется одномерная по оси x схема разбиения на лагранжевы узлы, см. [44, 45]. Разумеется, одномерный подход оправдан, поскольку размер пятна освещения на поверхности (от единиц до тысяч микрометров) оптическим лазером больше глубины прогрева фс-импульсом (доли микрометра, см. рис. 6, 9). В выражении (10) переменная x^0 — лагранжева координата, ρ_0 — плотность золота при нормальных условиях. До воздействия ршпр-импульса мишень однородна и ее плотность равна ρ_0 .

В численных расчетах применялась аппроксимация коэффициента α вида

$$\alpha(T_e, \rho) = 0.2 \frac{1 + (T_e/5060)^2}{1 + (T_e/7050)^5} \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^{5/3}. \quad (11)$$

В формуле (11) величина α приведена в единицах 10^{17} Вт/К/м³. Эта аппроксимация учитывает данные работы [27] по определению зависимости коэффициента обмена α (3), (11) от электронной температуры.

Сравнение потерь энергий в скин-слое за счет теплопроводности (2) и за счет нагрева решетки (3) приведено на рис. 12 и 13. Тепловой поток q (2) и удельная (на единицу объема) мощность обмена теплом между подсистемами (3) — разные по физическому смыслу и размерности величины. Нас интересует охлаждение поверхностного слоя с толщиной порядка толщины скин-слоя. За толщину этого поверхностного слоя взята величина $d = 20$ нм, см. разд. 3 и формулу (7). На рис. 12 и 13 сравниваются тепловой поток $q(x = 20 \text{ нм}, t)$ и величина E_{20} (12).

На рис. 12 и 13 показан тепловой поток $q(x = 20 \text{ нм}, t)$, который выводит электронную энергию из слоя d через правую границу данного слоя. Это так, поскольку граница с вакуумом (левая граница слоя d) является теплоизолированной: на ней указанный поток равен нулю, см. рис. 6. Таким образом поток q охлаждает слой d . Другой важный источник изменения внутренней энергии электронной подсистемы, сосредоточенной в слое d , это обмен энергиями между подсистемами, E_{20} . Эта величина определена как интеграл от стока (или притока) энергии в электронную подсистему

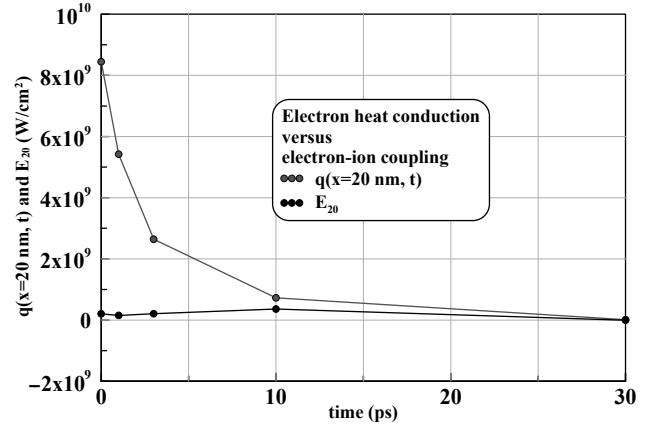


Рис. 12. (В цвете онлайн) Сравнение потоков энергии. Поток $q(x = 20 \text{ нм}, t)$ выносит энергию электронной подсистемы из поверхностного слоя толщиной d . Поток E_{20} (12) убавляет (или добавляет) энергию в электронную подсистему, принадлежащую слою d . Сведения, следующие из показанного здесь численного расчета, иллюстрируют участки 2, 3 и 4 на схеме на рис. 5. На участке 2 (выраженная 2Т-стадия) доминирует поток q . Затем на последующем участке 3 потоки q и E_{20} сближаются. На участке 4 эти потоки примерно равны по абсолютной величине

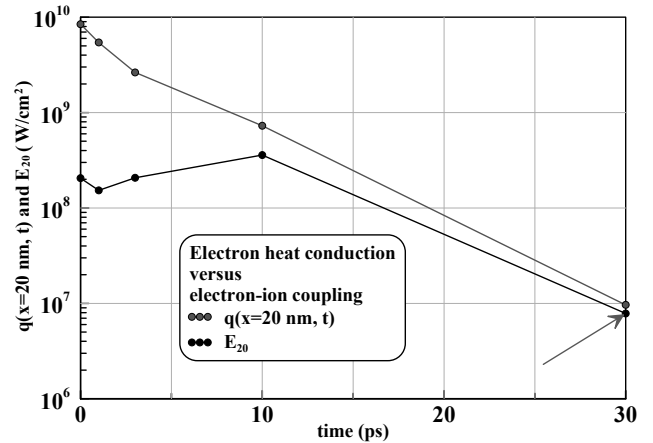


Рис. 13. (В цвете онлайн) Данный рисунок повторяет предыдущий, но с логарифмической вертикальной осью. Видим, что на 2Т-стадии поток q более, чем на порядок превосходит поток E_{20} , связанный с обменом между электронной и фононной подсистемами. На 1Т-стадии эти потоки примерно одинаковы. Зеленая стрелка справа указывает на значение потока E_{20} в момент 30 пс. В этот момент поток E_{20} имеет отрицательный знак. На данном рисунке мы заменили этот знак на положительный, чтобы можно было пользоваться осью логарифмов. Итак, после перехода от $T_{e|surf} > T_{i|surf}$ к $T_{e|surf} < T_{i|surf}$ потоки q и E_{20} имеют разные знаки. При этом по абсолютной величине они примерно равны и т. о. компенсируют друг друга

$$E_{20}(t) = \int_0^d \dot{E}_{ei}(x, t) dx. \quad (12)$$

Здесь подынтегральная величина дается формулой (3). Знак E_{20} зависит от знака разницы температур в формуле (3).

На участке 1 на схеме на рис. 5 в электронную подсистему слоя d за время $\tau_L = 150$ фс закачивается поглощенная энергия. В рассматриваемом здесь варианте эксперимента эта энергия равна 59.36 мДж/см². На участке поглощения 1 радиационный поток (интенсивность I) намного превышает охлаждающий электронный тепловой поток q , см. рис. 6. Поэтому электронная температура поверхности резко возрастает. На участке 2 снижение электронной температуры в основном обусловлено действием потока q , см. рис. 12 и 13. Причем из рис. 11 следует, что при описании коэффициента теплопроводности при температурах $T_e = 10$ – 18 К следует пользоваться не нашей теоретической кривой с $k_e = 1$, см. рис. 10 и 11, а зависимостью с сильно подавленным коэффициентом κ (параметр $k_e = 5$), см. обсуждение в разд. 5 и рис. 11.

Участок 3 на схеме на рис. 5 является переходным между 2Т-и 1Т-стадиями. На 1Т-стадии температуры $T_e(x, t)$ и $T_i(x, t)$ локально примерно одинаковы. Аналог рис. 7 для расчета 44 дает для времени окончания перехода (т. е. окончания участка 3) значение 31 пс. Примерно в этот момент времени резкое уменьшение электронной температуры $T_e|_{surf}(t)$ на поверхности сменяется на медленное уменьшение температуры $T_e|_{surf}(t)$. Расчету 43 на рис. 7 этому моменту соответствует значение 22 пс. Момент окончания переходного участка 3 показан отрезком 3–4 на рис. 5. Началом участка 3 на рис. 5 естественно положить время примерно 10 пс, когда происходит сближение потоков $q(x = 20$ нм, $t)$ и $E_{20}(t)$ (12), см. рис. 12 и 13.

В конце участка 3 электронная температура поверхности становится меньше, чем ионная температура поверхности. Это знаменательный момент. Для расчетов 43 и 44 это происходит в моменты времени 21 и 26 пс соответственно. Далее из поверхностного слоя d потоком q выводится в объем энергия, накопленная именно в ионной подсистеме.

До этого знаменательного момента поток q выводил энергию E_e электронной подсистемы. Энергия E_e была мала и все-таки убывала за счет потока q (и за счет потока E_{20} тоже, разумеется). При этом энергия ионной подсистемы E_i увеличивалась за счет притока (12) — поток E_{20} имел знак плюс. После смены знака разницы поверхностных температур начинается убывание накопленной энергии E_i . В конце участка 3 энергия E_e пренебрежимо мала по сравнению с энергией E_i . Это обусловлено

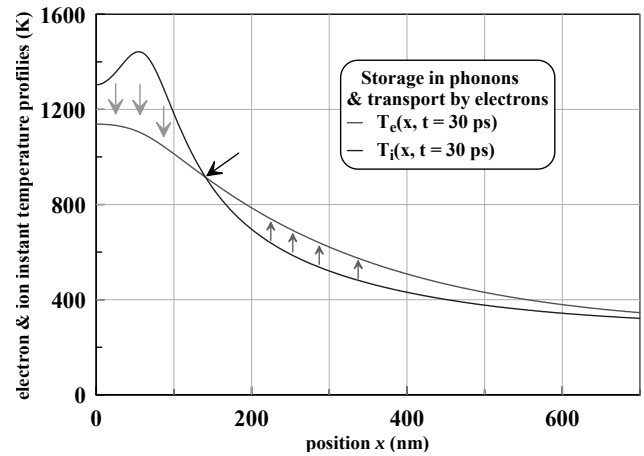


Рис. 14. (В цвете онлайн) Иллюстрация совместной работы фоновой и электронной подсистем в деле передачи тепла из горячей области в холодную. Фононы с большой теплоемкостью играют роль хранителей тепла, а легкие, быстрые электроны осуществляют передачу тепла, см. текст. Длина расчетного участка постепенно увеличивается. Это необходимо, чтобы исключить влияние правой границы, находящейся далеко в толще мишени. В момент 30 пс правая граница находится на расстоянии 2 мкм

громдой разностью теплоемкостей подсистем при низких температурах.

На участке 4 происходит снижение энергии E_i поверхностного слоя d . За промежуток времени dt малая порция dE_i энергии E_i передается в электронную подсистему, поскольку $T_e < T_i$, см. (3). Затем эта порция за указанный промежуток времени выводится из слоя d электронным потоком q . Отметим, что разница поверхностных температур $T_i - T_e$ значительна по величине. При $t = 50$ пс эта разница составляет 200 К (примерно 20% от температуры T_e). Постепенно разность температур $T_i - T_e$ уменьшается — при $t = 400$ пс она равна 80 К (10% от температуры T_e). Условие $T_i > T_e$ на температуре поверхности обеспечивает продолжение охлаждения поверхности на 1Т-стадии. Естественно назвать данное явление скрытым присутствием 2Т-эффектов на номинально 1Т-стадии.

В момент времени 30 пс смена знака разности $T_i - T_e$ как функции координаты x происходит в точке $x = 142$ нм. Эта точка отмечена косой черной стрелкой на рис. 14. Таким образом, при $x < 142$ нм энергия dE_i изымается из более горячей ионной подсистемы и при $x > 142$ нм, наоборот, передается в более холодную ионную подсистему, см. рис. 14. На рис. 14 голубые стрелки вниз на участке $x < 142$ нм иллюстрируют передачу энергии от фононов (они горячее) в электроны — охлаждение фононов. Наоборот розовые стрелки вверх на по-

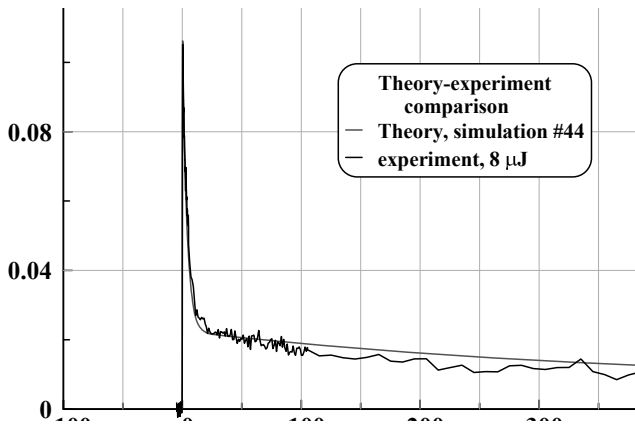


Рис. 15. (В цвете онлайн) Сравнение расчета 44 с экспериментом. Поглощенная энергия F_{abs} берется такой, как в данном опыте с энергией лазерного пикс-импульса 8 мкДж и энергией $F_{abs} = 59.36$ мДж/см². Красная кривая — расчет, черная — опыт в технике lock-in. Оптическая модель, по которой выполнен пересчет временных зависимостей T_e, T_i, ρ на поверхности в TTR, описана ниже в разд. 11

луоси $142 \text{ нм} < x < \infty$ указывают на нагрев фононов на этой полуоси. Аналогичный эффект при боковом температурно-диффузионном расширении пятна нагрева подмечен недавно в работе [47]. Там он назван отрицательной теплопроводностью. На самом деле это обычный механизм теплопроводности, работающий в 1Т-условиях. В точке $x = 142$ нм располагается перегиб мгновенного профиля электронной температуры. С течением времени точка смены знака разности $T_i - T_e$ перемещается глубже и глубже в толщу мишени. При этом локальная разность температур, отнесенная к локальной температуре, становится все меньше и меньше.

В заключение данного раздела скажем, что анализ потоков q и E_{20} , показанных на рис. 12 и 13, позволил нам глубже понять физический смысл участков 2, 3 и 4 на рис. 5.

7. СРАВНЕНИЕ ТЕОРИИ И ОПЫТОВ

На рис. 15 и 16 сравниваются теоретически-численное и экспериментальное TTR, т. е. функции от времени $\Delta R(t)/R_0$, где $\Delta R = R(t) - R_0$, R_0 — коэффициент отражения мишени из золота при нормальном падении электромагнитной волны (probe) с длиной волны 800 нм при нормальных условиях: температура 293 К, давление равно 1 атм. Отметим, что в технике lock-in определяется изменение коэффициента отражения ΔR , а не сам коэффициент отражения R . На рис. 15 и 16 время отсчитывается от максимума импульса накачки (pump).

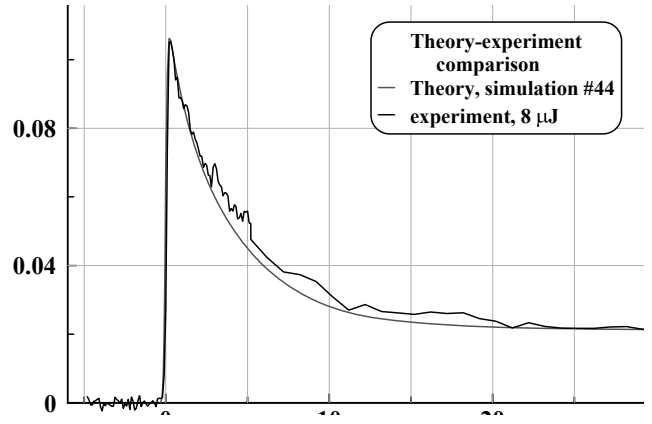


Рис. 16. (В цвете онлайн) Подробно показан 2Т-участок и область перехода в 1Т-стадию. Цвета, как на рис. 15

Зависимости на рис. 15 и 16 ясно делятся на стадии быстрого и медленного спада сигнала TTR. Первая стадия состоит из участков 1, 2 и 3 — резкое нарастание и быстрый спад амплитуды TTR, см. определения участков на рис. 5. Вторая стадия — это участок 4. Разделение стадий имеет место в точке 3–4 на рис. 5. На участке 4 продолжается спад амплитуды TTR, но в гораздо более медленном темпе. Обсуждению физических механизмов нагрева и охлаждения был посвящен разд. 6.

Важно отметить, что с помощью разработанной модели (описание параметров κ и α) удалось описать участок 4 с медленным затуханием амплитуды TTR. В предыдущей нашей статье по этой теме [27] медленное затухание отсутствовало — амплитуда TTR выходила на постоянное значение на участке 4, тогда как опыт указывал на снижение TTR, см. рис. 5 в статье [27].

В настоящей работе найдено, что отсутствие затухания в работе [27] было связано с выбором аппроксимации для параметра α . В статье [27] в качестве зависимости $\alpha(T_e)$ для золота была выбрана зависимость из статей [48, 49]. Аппроксимация этой зависимости имеет вид [49]

$$\alpha = \left(0.2 + \frac{(T_e|_{eV})^{3.6}}{1 + (T_e|_{eV})^{3.5} + 0.9(T_e|_{eV})^{4.1}} \right) \times \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^{5/3}. \quad (13)$$

Значения $\alpha(T_e, \rho)$ в формуле (13) даются в единицах 10^{17} Вт/К/м³. Электронная температура $T_e|_{eV}$ берется в эВ.

Зависимости $\alpha(T_e, \rho = \rho_0)$ представлены на рис. 17. В настоящей работе при численном моделировании применяется зависимость (11). В работе [27] использовалась формула (13). Для того чтобы при

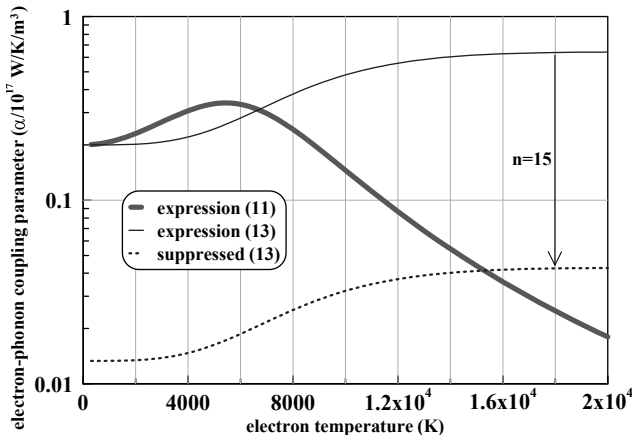


Рис. 17. (В цвете онлайн) Зависимость параметра электрон-фонового взаимодействия α от электронной температуры при нормальной плотности $\rho = \rho_0$

энергиях $F_{abs} > 30$ мДж/см² соответствовать эксперименту по темпу спада TTR на 2Т-стадии, необходимо было уменьшать коэффициент теплопроводности κ при высоких температурах T_e с помощью фактора k_e . Если при этом оставлять значения α на относительно высоком уровне, задаваемом формулой (13), то ионная температура при переходе к 1Т-стадии получалась слишком высокой и не соответствовала опыту. Поэтому необходимо было снижать значения α , чтобы дать возможность слабой теплопроводности κ прогреть слой достаточной толщины и таким образом снизить поверхностную температуру T_i .

Для снижения значения α функция (13) в работе [27] делилась на фактор подавления $n > 1$. Пример слабого электрон-фонового взаимодействия показан на рис. 17 синей пунктирной кривой. Эта кривая получается при делении функции (13) на фактор подавления $n = 15$. Для того чтобы замедлить темп снижения TTR и понизить температуру T_i на переходе от 2Т-стадии к 1Т-стадии, в работе [27] факторы k_e и n выбирались достаточно большими: k_e до 7.5, n до 30.

Таким образом удавалось и темп снижения TTR на 2Т-стадии привести в согласие с опытом, и температуру T_i в конце 2Т-стадии понизить до соответствия экспериментальным измерениям. Единственной проблемой оставалось слишком медленное убывание расчетной температуры $T_i(t)|_{surf}$ на 1Т-стадии.

В настоящей работе указанная трудность преодолена. Дело в том, что фактор подавления действовал на коэффициент α однородно — во всем диапазоне температур T_e . В том числе значения α оказывались ниже экспериментально определенных

значений (6) при относительно низких температурах $T_e < 4\text{--}5$ кК. Казалось бы, в 1Т-состояниях параметр α становится несуществен — теплопередача определяется коэффициентом κ . Причем коэффициент κ в нашей модели теплопроводности при стремлении к 1Т-состоянию в твердой фазе стремится к справочным значениям $\kappa \approx 300$ Вт/К/м, см. разд. 10. Получается, что оба коэффициента существенны для передачи тепла в 1Т-состояниях.

Наши расчеты в данной работе показали, что значения α при относительно низких температурах на 1Т-стадии определяют разность температур T_e и T_i , см. разд. 6, где написано про участки 3 и 4. Таким образом значения α влияют на теплопередачу с поверхности в объем на 1Т-участке 4. От данной теплопередачи зависит темп снижения температуры $T_i(t)|_{surf}$ на поверхности.

В свою очередь, от температуры $T_i(t)|_{surf}$ зависит амплитуда TTR, особенно на 3-м и 4-м участках на рис. 5; см. разд. 11, посвященный оптической модели. В принятом здесь подходе значения α даются формулой (11). Соответствующая зависимость показана на рис. 17 зеленой кривой. Как видим, данная кривая, во-первых, имеет низкие значения α при высоких температурах T_e и, во-вторых, выходит на экспериментальные значения α (6) при низких температурах T_e . Значения α (6) были получены в теперь уже старых работах [11–14], когда нагревы в технике lock-in были слабыми.

Сделаем небольшое отступление, связанное с современным развитием упомянутых работ.

(а) В работах [11–14], во-первых, подтверждено значение α (6), а во-вторых, показано, что при низких температурах T_e коэффициент κ в 2Т-состояниях высокий — температуропроводность χ на два порядка выше табличных значений в нормальных условиях. Работы [12–14] характеризовались первыми применениями техники lock-in на ультратонких пленках золота и слабыми нагревами электронной подсистемы — температуры T_e не более чем порядка 1 кК, флюенсы $F_{abs} \sim 1$ мДж/см² и меньше. Отметим недавние работы [50–52] с теми же параметрами очень слабого ринг-воздействия на ультратонкие пленки. В них рассматривается боковое распространение (пространственное уширение на поверхности) профиля электронной температуры поверхности $T_e|_{surf}(y, z, t)$ с течением времени. Здесь y, z — координаты на облучаемой поверхности пленки. Индекс « $|_{surf}$ » означает, что рассматривается температура поверхности. Поверхность — это плоскость $x = 0$. Положительные значения координаты x относятся к золоту, см. рис. 6, 9. Оптический

пробе-импульс не может заглянуть в толщу золота глубже скин-слоя. Выход заключается в том, чтобы изучать эволюцию профиля $T_e|_{surf}(r, t)$ на поверхности; считаем пятно ршпр-импульса на поверхности кругом, тогда радиус r отсчитывается от центра круга. Так и делается в работах [50–52]. Оказывается эволюция диффузии электронной тепловой энергии вбок (вдоль поверхности ультратонкой пленки) аналогична диффузии вглубь.

(b) Результаты недавних работ [50–52], по существу, повторяют вывод, сделанный ранее в работах [12–14] и [53]. Вывод этот следующий. На 2Т-стадии температуропроводность $\chi = \kappa/c$ золота намного выше ($\chi \sim 100 \text{ см}^2/\text{с}$), чем на 1Т-стадии ($\chi \approx 1 \text{ см}^2/\text{с}$). В работе 2011 года [53] дано простое пояснение. Показано, что это связано со слабой связью электронной подсистемы (у нее малая теплоемкость c) с ионной подсистемой (большая теплоемкость $3k_B$). Слабое взаимодействие подсистем имеет место на 2Т-стадии. Здесь говорится о слабости теплового взаимодействия между подсистемами по сравнению с электронным транспортом тепла (см. рис. 12 по этому поводу). Другой вывод статей [50–52] касается определения коэффициента α . Как в старых, так и в новых работах приходят к выводу, что этот коэффициент равен значению (6). Подчеркнем, что это значение относится именно к слабым нагревам, см. рис. 17.

(c) Поворот электронного теплового потока в пленках с направления по нормали к пленке на направление вдоль пленки рассматривался ранее в статьях [54] (разд. 3.2 об остывании), [55] (разд. 2) и [56]. Было показано, что тепловое уширение Δr_T на 2Т-стадии вдоль поверхности пленки примерно равно толщине слоя прогрева $d_T \approx 2\sqrt{\chi t_{2T}}$ мишени в глубину на 2Т-стадии. Подставляя в оценку d_T увеличенную на 2Т-стадии температуропроводность $\chi = 100 \text{ см}^2/\text{с}$ и беря продолжительность 2Т-стадии t_{2T} в пикосекундах, получаем $d_T \approx 200\sqrt{t_{2T}}$ нм. Уширение Δr_T — это увеличение радиуса пятна облучения R_L ршпр-импульсом на поверхности мишени. Понятно, что для успеха измерений уширения Δr_T как функции времени, во-первых, пятно R_L должно быть мало (меньше микрометра), чтобы масштабы R_L и Δr_T были сопоставимы. Во-вторых, пятно должно иметь резкий край, на котором распределение интенсивности по радиусу резко уменьшается.

(d) В эксперименте часто применяют формулу Лиу [57], чтобы, во-первых, определить порог и, во-вторых, по наклону зависимости r^2 от логарифма энергии лазерного импульса $\ln E_L$ определить ради-

ус лазерного пучка R_L на облучаемой поверхности. Здесь r — это радиус пятна повреждения. Разумеется, для того чтобы работал метод работы [57], радиальное распределение интенсивности по поверхности должно быть функцией Гаусса. Понятно, что быстрое тепловое уширение пятна нагрева нарушит зависимость, взятую из работы [57], см. [58].

В заключение данного раздела можно сказать, что разработанный нами подход позволяет удовлетворительно описать эксперимент, см. рис. 15 и 16.

8. ЭКСПЕРИМЕНТ

В работе использована экспериментальная схема (рис. 18) «накачка–зондирование» (pump–probe) с использованием усиленных регенеративным усилителем импульсов с частотой следования до 1 кГц и методики фазочувствительного детектирования с помощью синхронного усилителя (СУ) и оптического модулятора (чоппера) [59].

В качестве экспериментального образца 11 использовались поликристаллический массивный образец золота. В другой серии опытов применялась поликристаллическая пленка золота толщиной 100 нм на стеклянной подложке. Толщина пленки измерялась с помощью атомно-силового микроскопа (Veeco, Multimode 5).

Источником излучения 1 служила фемтосекундная титан-сапфировая лазерная система (Legend, Coherent, США) с параметрами импульсов: длина волны $\lambda_1 = 800 \text{ нм}$, длительность $\tau_L = 60 \text{ фс}$, энергия E до 1.1 мДж. На выходе регенеративного уси-

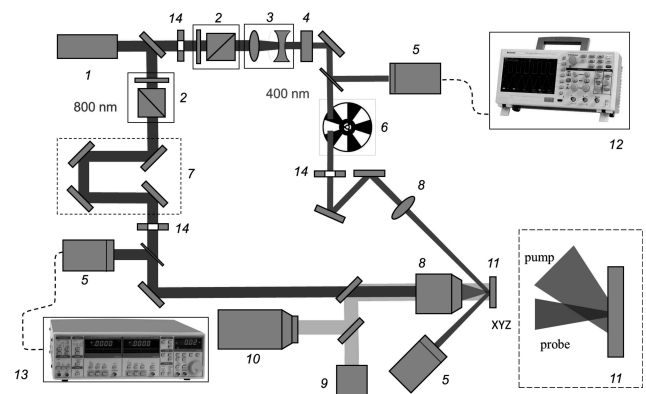


Рис. 18. Экспериментальная схема: 1 — лазер; 2 — аттенюатор; 3 — телескоп; 4 — кристалл второй гармоники ВВО; 5 — фотодиод; 6 — механический прерыватель (чоппер); 7 — оптическая линия задержки; 8 — фокусирующий объектив; 9 — лампа подсветки; 10 — ПЗС-камера; 11 — экспериментальный образец; 12 — осциллограф; 13 — синхронный усилитель; 14 — диафрагмы

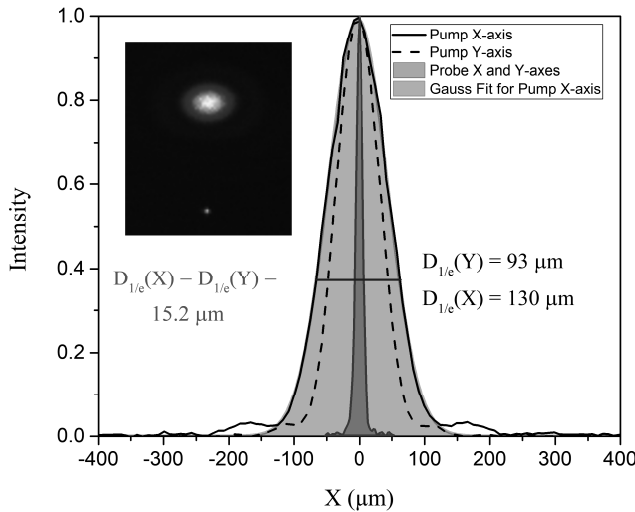


Рис. 19. (В цвете онлайн) Пространственное распределение нагревающего и зондирующего излучения: для нагревающего импульса показано распределение по осям X и Y ; для зондирующего распределение одинаковое по осям X и Y ; аппроксимация функцией Гаусса приведена для нагревающего импульса по оси X ; на вставке — распределение нагревающего (большое пятно сверху) и зондирующего (маленькое пятно внизу) излучения в фокусе на мишени, измеренное с помощью ПЗС-камеры. Синяя горизонтальная линия указывает уровень $1/e$ по отношению к максимуму

лителя была установлена ячейка Поккельса, улучшающая контраст лазерного импульса.

Частота следования зондирующих импульсов варьировалась от 63 Гц до 1 кГц. Опорная частота для СУ задавалась механическим прерывателем Thorlabs MC2000B с диском MC1F60 6, который прореживал нагревающее излучение до частоты следования рпмп-импульсов 31.5–500 Гц. Синхронное детектирование осуществлялось при наклоне фильтра 24 дБ/октава и временной константе 100 мс. Эквивалентная ширина шумовой полосы частот при этом составляла 0.78 Гц, а время ожидания 1000 мс. Регистрация синфазной компоненты X на выходе СУ осуществлялась осциллографом Tektronix TDS 3054C 12 и программным обеспечением, управляющим положением моторизованной оптической линии задержки.

Нагревающий импульс лазерного излучения преобразовывался в кристалле β -бората бария (ВВО) 4 во вторую гармонику с длиной волны 400 нм и энергией до 25 мкДж. Для варьирования энергии нагревающего и зондирующего импульсов использовались аттенюаторы 2, состоящие из полуволновой пластины и поляризатора (призма Глана). Энергия зондирующего излучения контролировалась фотодиодом 5 Thorlabs DET100 A/M. Энергия нагрева-

ющего (рпмп) импульса измерялась с помощью калиброванного фотодиода 5 и в эксперименте варьировалась от 0.4 до 8 мкДж.

Излучение нагревающего импульса p -поляризации на длине волны 400 нм падало на образец под углом 45° , а излучение зондирующего импульса на длине волны 800 нм — по нормали к поверхности образца.

На рис. 19 показан профиль распределения интенсивности нагревающего и зондирующего импульсов на мишени, регистрируемые ПЗС-камерой PCO Sensicam QE 10.

Пространственное распределение нагревающего излучения соответствовало распределению Гаусса с радиусами $r_{0x} = 65$ мкм и $r_{0y} = 46.5$ мкм по уровню $1/e$. Величина падающей на мишень плотности энергии нагревающего импульса рассчитывалась по формуле

$$F_0 = \frac{E}{\pi r_{0x} r_{0y}}.$$

Здесь F_0 — плотность энергии в центре фокального пятна, E — измеряемая фотодиодом энергия импульса. Величина падающей плотности энергии на мишени варьировалась в диапазоне от 5.3 до 84.8 мДж/см². Погрешность измерения плотности энергии не превышала $\pm 3\%$. Величина экспериментально измеренного коэффициента отражения нагревающего излучения составила 0.3 для массивного образца и 0.2 для пленки золота.

Радиус пятна зондирующего излучения (7.6 мкм по уровню $1/e$) был существенно меньше нагревающего (см. рис. 19), а плотность энергии не превышала 0.08 мДж/см².

Для изменения временной задержки между нагревающим и зондирующим импульсами использовалась оптическая линия задержки 7, состоящая из двух зеркал и моторизованного транслятора Thorlabs LTS300/M, позволяющего перемещать отражатель с точностью до 1 мкм, см. рис. 18. Указанная точность соответствует шагу задержки по времени 6.6 фс. Предельное временное разрешение в данном случае определяется длительностью пробного импульса и составляет около 60 фс. Исследуемый образец располагался на моторизованном трехкоординатном мишенном узле. В качестве такого узла использовался моторизованный столик фирмы Standa с длиной хода 10 мм.

Отраженный от мишени зондирующий сигнал регистрировался фотодиодом 5 и подавался на вход СУ Stanford research systems SR830 13, имеющий динамический диапазон 100 дБ. Для визуализации поверхности мишени и пространственного совмещения

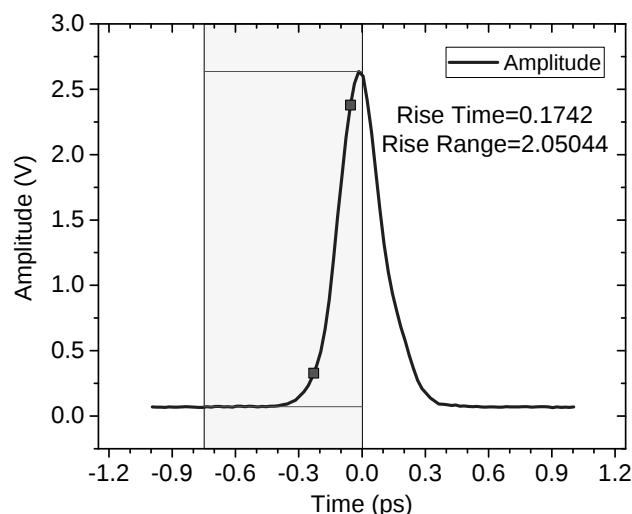


Рис. 20. Кросс-корреляционная функция нагревающего и зондирующего импульсов в плоскости мишени

нагревающего и зондирующего излучения использовалась подсветка 9 и ПЗС-камера 10.

Чтобы совместить по времени нагревающий и зондирующий пучки, в плоскость мишени помещался кристалл генерации третьей гармоники ВВО, а после него располагалась голографическая дифракционная решетка 300 штрих/мм для спектральной селекции излучения на длине волны 266 нм. Излучение третьей гармоники регистрировалось фотодиодом. Перемещая транслятор линии задержки, прописывалась кросс-корреляционная функция (рис. 20) нагревающего и зондирующего импульсов. Положение линии задержки, соответствующее максимуму сигнала третьей гармоники, принимался за «нулевую» задержку. В этом случае максимум нагревающего импульса совпадает во времени с максимумом зондирующего. После определения «нулевой» задержки исследуемый образец устанавливался на мишенный узел и проводились измерения временной динамики коэффициента отражения.

Длительность зондирующего импульса, измеряемая автокоррелятором, составляла 60 фс. Длительность свертки нагревающего и зондирующего импульсов по уровню полной ширины на половине высоты (FWHM) составляла 244 фс.

Для определения величины R_0 записывался сигнал зондирующего излучения на частоте 1 кГц в отсутствие нагрева и модуляции нагревающего излучения. После этого определялась величина $\Delta R/R_0$. Погрешность измерения амплитуды определялась как величина среднеквадратичного отклонения при усреднении по нескольким измерениям. Эта погрешность превышала величину приборной погрешности и составляла не более $2 \cdot 10^{-4}$.

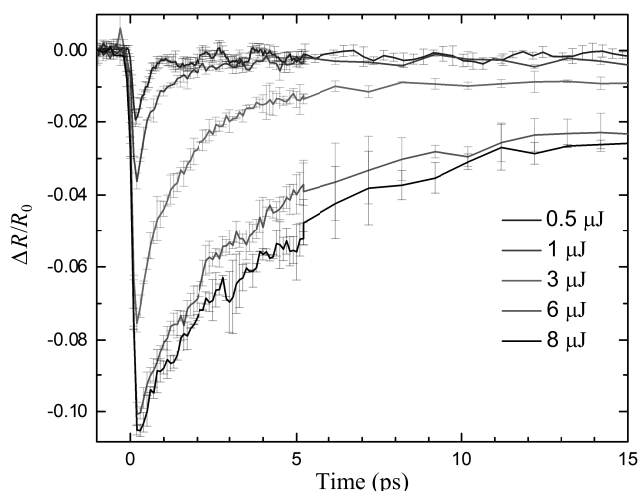


Рис. 21. (В цвете онлайн) Зависимости сигнала TTR объемной золотой мишени от времени при различных энергиях лазерных импульсов во временном интервале 0–15 пс

9. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

В эксперименте проводились измерения относительного изменения коэффициента отражения мишени, $\Delta R/R_0$, в зависимости от времени с субпикосекундным разрешением при различной плотности энергии нагревающих импульсов. Используемая линия задержки позволяла регистрировать временные зависимости сигнала TTR с шагом 6 фс. Шаг изменения задержки при сканировании изменялся в зависимости от скорости изменения сигнала TTR и варьировался от 30 фс на малых временах (0–10 пс) до 10 пс на больших временах (100–350 пс). Зондирующее излучение фокусировалось в центр области нагрева. Экспериментальные зависимости были получены вплоть до максимально возможной плотности энергии нагревающих импульсов, не приводящей к необратимым изменениям, связанным с деградацией поверхности мишени. Для этого измерения проводились на минимальной частоте повторения нагревающих импульсов 31.5 Гц.

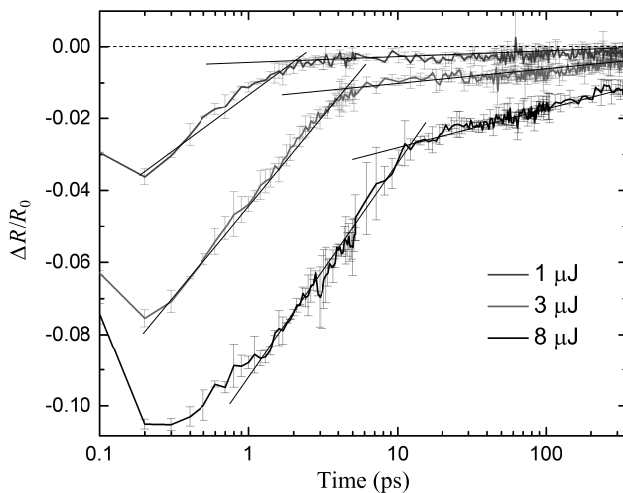
На рис. 21 приведены зависимости сигнала TTR объемной золотой мишени при различной энергии фс-импульса.

Для каждого значения энергии лазерных импульсов проводились три серии сканирования с последующим усреднением полученных временных зависимостей. Погрешность определялась среднеквадратичным отклонением по этим измерениям.

В таблице приведено соотношение энергии лазерного импульса с падающей и поглощенной плотностями энергии для измеренного коэффициента отражения нагревающего излучения от объемной золотой мишени, равного 0.3.

Таблица. Параметры нагревающих импульсов на мишени

№	E , мкДж	F , мДж/см ²	F_{abs} , мДж/см ²
1	0.5	5.3	3.7
2	1	10.6	7.42
3	3	31.8	22.26
4	6	63.6	44.52
5	8	84.8	59.36

**Рис. 22.** (В цвете онлайн) Зависимости сигнала TTR объемной мишени от времени при различных энергиях фс-импульсов во временном интервале 0–300 пс. Шкала времени дана в логарифмическом масштабе

Из приведенных зависимостей следует, что с ростом энергии фс-импульса время спада сигнала TTR увеличивается и составляет по уровню $1/e$ от 0.5 пс для 0.5 мкДж до 7 пс для 8 мкДж.

На рис. 22 приведены зависимости сигнала TTR для трех значений энергии лазерных фс-импульсов в широком временном интервале.

На каждом из графиков выделяются два характерных временных интервала с различной скоростью убывания величины $\Delta R/R_0$, которые, очевидно, характеризуют динамику остывания электронной подсистемы золота на 2Т- и 1Т-стадиях. На рис. 22 эти участки аппроксимированы прямыми линиями. Как следует из рис. 22, длительность 2Т-стадии увеличивается с ростом энергии импульса. Кроме того, с ростом энергии на 1Т-стадии увеличивается наклон зависимостей.

10. ТЕОРИЯ ДВУХТЕМПЕРАТУРНОЙ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ

Теоретическая зависимость коэффициента теплопроводности κ находится сложением электрон-электронного и электрон-фоонного тепловых сопротивлений $1/\kappa$. Теория электрон-электронного рассеяния описана в статье [41]. Здесь эта теория модифицирована на случай золота. Коэффициент теплопроводности в случае только электрон-фоонного взаимодействия, κ_{ei} , вычисляем в соответствии с недавней работой [42]. Отметим, что в работе [42] электрон-электронное рассеяние не учитывается. Наш подход пригоден как в 2Т-, так и в 1Т-состояниях. В твердой фазе в 1Т-состоянии при температурах выше температуры Дебая значения нашего коэффициента κ выходят на известные табличные значения.

В 2Т-состоянии, $T_e \gg T_i$, основной вклад в электронную теплопроводность вносит теплопроводность за счет электрон-электронных столкновений. Коэффициент теплопроводности κ_{ee} за счет электрон-электронных столкновений вычислен нами, как это сделано в работе [41], с использованием кинетического уравнения для электронов. В случае золота коэффициент κ_{ee} состоит из суммы двух слагаемых: κ_{ss} и κ_{sd} . Они соответствуют вкладу $s-s$ - и $s-d$ -рассеяния электронов в коэффициент теплопроводности. Величины κ_{ss} и κ_{sd} в соответствии с формулой Друде определяют соответствующие средние частоты ν_{ss} , ν_{sd} $s-s$ - и $s-d$ -рассеяния.

Решение кинетического уравнения найдено в приближении времени релаксации. Аппроксимация этого решения как суммы отдельно вычисляемых κ_{ss} и κ_{sd} в случае золота [48] имеет вид

$$\kappa_{ee}^{-1}(T_e, x) = \frac{9.294 \cdot 10^{-4} (t/x)}{1 + 0.03\sqrt{t} - 0.2688t + 0.9722t^2}. \quad (14)$$

Формула (14) дает значения коэффициента κ_{ee} в единицах системы СИ: Вт/К/м. Здесь мы ввели приведенную плотность

$$x = \rho/\rho_0 \quad (15)$$

с $\rho_0 = 19.5 \text{ г/см}^3$ и безразмерную электронную температуру

$$t = 0.0000561977 T_e/x. \quad (16)$$

Как сказано, в нашем подходе коэффициент теплопроводности κ_{ei} для электрон-фоонного рассеяния при нормальной плотности взят в соответствии с работой [42]. С учетом зависимости от плотности коэффициент κ_{ei} может быть аппроксимирован выражением

$$\kappa_{ei}(T_e, T_i, x) = 21857 t \frac{1 - 1.82427 t + 2.22019 t^2}{1 - 1.14826 t + 6.72599 t^2} \times x^{4/3} y(x) \frac{300}{T_i}. \quad (17)$$

Величина κ_{ei} в этом выражении так же, как в формуле (14) выше, дается в единицах системы СИ. Ионная температура T_i задается в градусах Кельвина.

В формуле (17) введена определенная ниже безразмерная функция

$$y(x) = \frac{1.1963 x^{4.6932}}{1 + 0.196302 x^{2.8466}},$$

учитывающая зависимость дебаевской температуры от плотности.

С учетом как электрон-ионного (17), так и электрон-электронного (14) рассеяния коэффициент теплопроводности записывается в следующем виде:

$$\kappa(T_e, T_i, x) = \left(k_e \kappa_{ee}^{-1}(T_e, x) + \kappa_{ei}^{-1}(T_e, T_i, x)^{-1} \right)^{-1} \quad (18)$$

В выражении (18) мы вели безразмерный коэффициент k_e , чтобы иметь возможность варьировать электрон-электронный вклад в коэффициент теплопроводности.

Формула (18) применяется в предшествующих разд. 2–7. Пример расчета коэффициента κ приведен выше на рис. 2 и 10. Из рис. 2 следует, что в 1Т-состояниях при температурах ниже температуры плавления золота коэффициент (18) выходит на табличные значения $\kappa \approx 300$ Вт/К/м.

Расчет теплопроводности является важной составляющей при моделировании лазерного воздействия с помощью 2Т-кода.

11. ОПТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Использованный выше 2Т-код превращает исходные данные в зависимости $T_e(x, t)$, $T_i(x, t)$. Исходными данными являются взятые из эксперимента значения поглощенной энергии F_{abs} и длительности импульса τ_L (разумеется, при заранее определенных зависимостях коэффициентов κ и α от параметров, описывающих состояние золота). Вместе с функциями $T_e(x, t)$, $T_i(x, t)$ определяются зависимости поверхностных температур от времени: $T_e|_{surf}(t)$, $T_i|_{surf}(t)$, см. пример на рис. 7 выше. Для пересчета эволюции поверхностных температур в зависимость TTR от времени, мы используем оптическую модель, которая приведена ниже. Теоретически вычисленные зависимости TTR от времени

сопоставляются с зависимостями TTR от времени из эксперимента, см. рис. 16 и 17.

В приближении Друде – Лоренца действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости могут быть записаны соответственно в виде

$$\epsilon_1(\omega) = 1 - \frac{\omega_{ps}^2}{\omega^2 + \nu_s^2} + \frac{\omega_{pd}^2(\omega_d^2 - \omega^2)}{(\omega_d^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \nu_d^2},$$

$$\epsilon_2(\omega) = \frac{\omega_{ps}^2}{\omega^2 + \nu_s^2} \frac{\nu_s}{\omega} + \frac{\omega_{pd}^2 \omega \nu_d}{(\omega_d^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \nu_d^2}.$$

Считаем, что частоты ω_d и ν_d принадлежат d -зоне, ω — лазерная частота. Плазменные частоты ω_{ps}^2 и ω_{pd}^2 пропорциональны плотности и содержат также силы осцилляторов. Явно выделим пропорциональность ω_{ps}^2 и ω_{pd}^2 приведенной плотности x :

$$\omega_{ps}^2 = \omega_{0s}^2 x, \quad \omega_{pd}^2 = \omega_{0d}^2 x,$$

величина x определена формулой (15), индексом нуль выделены значения частот при нормальной плотности $x = 1$. Для рассматриваемых нами небольших частот излучения ω ($\lambda = 800$ нм, далеко от края d -зоны золота, ргобе-импульс) можно написать

$$\epsilon_1(\omega) = 1 - \frac{\omega_{0s}^2 x}{\omega^2 + \nu_s^2} + \frac{\omega_{0d}^2 x}{\omega_d^4},$$

$$\epsilon_2(\omega) = \frac{\omega_{0s}^2 x}{\omega^2 + \nu_s^2} \frac{\nu_s}{\omega} + \frac{\omega_{0d}^2 \nu_d}{\omega_d^4} \omega x.$$

В приближении Друде – Лоренца от d -зоны остаются добавочные слагаемые — это последние слагаемые в приведенных выше двух формулах. Этими добавками модель Друде – Лоренца отличается от модели Друде в случае, когда энергия фотона существенно меньше энергии края d -зоны.

Считая значения ω_{0d} , ω_d , ν_d постоянными и вводя постоянные величины b_1 , b_2 , получаем

$$\epsilon_1(\omega) = 1 - \frac{\omega_{0s}^2 x}{\omega^2 + \nu_s^2} + b_1 x,$$

$$\epsilon_2(\omega) = \frac{\omega_{0s}^2 x}{\omega^2 + \nu_s^2} \frac{\nu_s}{\omega} + b_2 \omega x.$$

При нормальных условиях ($x = 1$, $T_i = T_{rt} = 293$ К, T_{rt} — комнатная температура) обозначим частоту релаксации ν_s через ν_{s0} . Воспользуемся известными для двух частот ω_1 и ω_2 диэлектрическими постоянными из работы [60]. В результате получаем четыре уравнения для четырех неизвестных величин, ω_{0s}^2 , ν_{s0} , b_1 , b_2 :

$$\begin{aligned}\epsilon_1(\omega_1) &= 1 - \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_1^2 + \nu_{s0}^2} + b_1, \\ \epsilon_2(\omega_1) &= \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_1^2 + \nu_{s0}^2} \frac{\nu_{s0}}{\omega_1} + b_2\omega_1, \\ \epsilon_1(\omega_2) &= 1 - \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_2^2 + \nu_{s0}^2} + b_1, \\ \epsilon_2(\omega_2) &= \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_2^2 + \nu_{s0}^2} \frac{\nu_{s0}}{\omega_2} + b_2\omega_2.\end{aligned}$$

Из этой системы уравнений получаем кубическое уравнение для величины $\xi = \nu_{s0}/\omega_1$:

$$\xi \left(1 + \left(\frac{\omega_2}{\omega_1} \right)^2 + \xi^2 \right) = - \frac{\epsilon_2(\omega_1) \frac{\omega_2}{\omega_1} - \epsilon_2(\omega_2) \frac{\omega_2}{\omega_1}}{\epsilon_1(\omega_1) - \epsilon_1(\omega_2)} \frac{\omega_2}{\omega_1}.$$

Решая это уравнение, находим ξ , а значит, ν_{s0} . Затем находим нужные нам три величины ω_{0s}^2, b_1, b_2 :

$$\begin{aligned}\frac{\omega_{0s}^2}{\omega_1^2} &= \frac{\epsilon_1(\omega_1) - \epsilon_1(\omega_2)}{((\omega_2/\omega_1)^2 + \xi^2)^{-1} - (1 + \xi^2)^{-1}}, \\ b_1 &= \epsilon_1(\omega_1) - 1 + \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_1^2} (1 + \xi^2)^{-1}, \\ b_2\omega_1 &= \epsilon_2(\omega_1) - \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_1^2} (1 + \xi^2)^{-1} \xi.\end{aligned}$$

Две частотные линии возьмем соответствующими длинам волн $\lambda_1 = 800$ нм и $\lambda_2 = 1800$ нм. Из работы [60] для рассматриваемого нами случая золота были взяты значения

$$\begin{aligned}\epsilon_1(\omega_1) &= -23.360, & \epsilon_2(\omega_1) &= 0.76850, \\ \epsilon_1(\omega_2) &= -147.20, & \epsilon_2(\omega_2) &= 5.4235.\end{aligned}$$

Это дает

$$\begin{aligned}\xi &= 0.01523, & \nu_{s0} &= 0.03588 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}, \\ \omega_{0s}^2/\omega_1^2 &= 30.5266, & b_1 &= 6.1595, & b_2\omega_1 &= 0.3038.\end{aligned}$$

В 2Т-состоянии частота релаксации ν_s есть сумма частот электрон-фоонных s - i - и электрон-электронных s - s - и s - d -столкновений:

$$\begin{aligned}\nu_s(T_e, T_i, x) &= \\ &= \nu_{si}(T_i, x) + A_{ss}\nu_{ss}(T_e, x) + A_{sd}\nu_{sd}(T_e, x).\end{aligned}$$

Здесь $A_{ss} \sim 1$, $A_{sd} \approx 1$ — параметры настройки. Они подбираются так, чтобы максимумы экспериментальной и теоретической TTR-зависимостей были одинаковыми — нормировка на максимум.

Частота ν_{si} выражается через ν_{s0} как

$$\nu_{si}(T_i, x) = \nu_{s0} \frac{x}{x_0} \frac{y(x_0)}{y(x)} \frac{2/5 + T_i/\Theta(x)}{2/5 + T_i/\Theta(x)}.$$

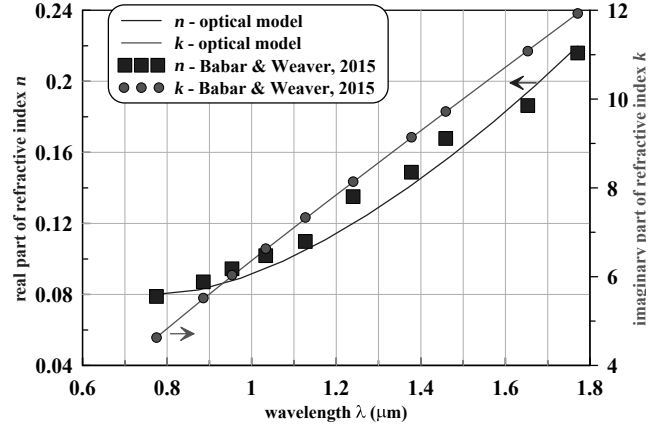


Рис. 23. (В цвете онлайн) Действительная (n , синие символы и кривая) и мнимая (k , красные символы и кривая) части показателя преломления $n + ik$ золота как функция длины волн. Символы — данные из работы [60], сплошные кривые — показатель преломления $n + ik$, соответствующий диэлектрической проницаемости в виде (19) и (20)

Здесь введены функция

$$y(x) = \frac{x^{2a+1}}{b + 1 + (a - b)x^{a+1}}$$

и зависящая от приведенной плотности x температура Дебая

$$\Theta(x) = \Theta_0 \left(\frac{x}{x_0} \right)^{1/3} \sqrt{\frac{y(x)}{y(x_0)}}.$$

В этом выражении $\Theta_0 = 170$ К — температура Дебая при плотности 19.3 г/см³, $a = 3.92$ и $b = 1.95$ — показатели степени в выражении $p(x) = p_0(x^{a+1} - x^{b+1})$, аппроксимирующем так называемое холодное давление (зависимость давления от плотности при нулевой температуре).

Частоты ν_{ss} и ν_{sd} вычислялись вместе с вычислением соответствующих коэффициентов теплопроводности κ_{ss} и κ_{sd} и могут быть представлены следующими аппроксимирующими зависимостями:

$$\nu_{ss}(T_e, x) = 1.13845 \frac{x}{x_0} t^2 \frac{1 + 0.784364 t^2}{1 + 0.656757 t^{3.11359}} 10^{15} \text{ с}^{-1}$$

и

$$\nu_{sd}(T_e, x) = 2.7956 \frac{x}{x_0} e^{-\frac{2.6047}{t}} \frac{1 + 3.4355 t^{1.6311}}{1 + 1.3559 t^{1.8054}} 10^{15} \text{ с}^{-1},$$

где безразмерная электронная температура t определена нормировкой (16).

В 2Т-состоянии действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости равны

$$\epsilon_1(\omega, T_e, T_i, x) = 1 - \frac{\omega_{0s}^2 x}{\omega^2 + \nu_s^2(T_e, T_i, x)} + b_1 x, \quad (19)$$

$$\epsilon_2(\omega, T_e, T_i, x) = \frac{\omega_{0s}^2 x}{\omega^2 + \nu_s^2(T_e, T_i, x)} \frac{\nu_s(T_e, T_i, x)}{\omega} + b_2 \omega x. \quad (20)$$

Они определяют комплексный коэффициент преломления пленки золота толщины H_2 :

$$n_2 = \left(\frac{\sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2} + \epsilon_1}{2} \right)^{1/2} + i \left(\frac{\sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2} - \epsilon_1}{2} \right)^{1/2}.$$

Действительная (n) и мнимая (k) части показателя преломления золота в зависимости от длины волны в интересующем нас диапазоне длин волн приведены на рис. 23. Символами показаны данные работы [60], а сплошными кривыми — расчет по приведенной в этой главе оптической модели.

Рассматриваемая нами многослойная структура состоит из вакуума, в котором волновое число зондирующего (probe) импульса $k_1 = 2\pi/\lambda$, пленки золота толщины H_2 , в которой волновое число $k_2 = k_1 n_2$, стеклянной подложки толщины H_3 , в которой волновое число $k_3 = k_1 n_3$ ($n_3 = 1.5$), и снова вакуума. Введем для такой структуры величины A и B следующего вида:

$$\begin{aligned} A = & \left(1 - \frac{k_2}{k_1}\right) e^{-ik_2 H_2} \left[\left(1 + \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 + \frac{k_4}{k_3}\right) e^{-ik_3 H_3} + \right. \\ & \left. + \left(1 - \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 - \frac{k_4}{k_3}\right) e^{ik_3 H_3} \right] + \\ & + \left(1 + \frac{k_2}{k_1}\right) e^{ik_2 H_2} \left[\left(1 - \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 + \frac{k_4}{k_3}\right) e^{-ik_3 H_3} + \right. \\ & \left. + \left(1 + \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 - \frac{k_4}{k_3}\right) e^{ik_3 H_3} \right], \end{aligned}$$

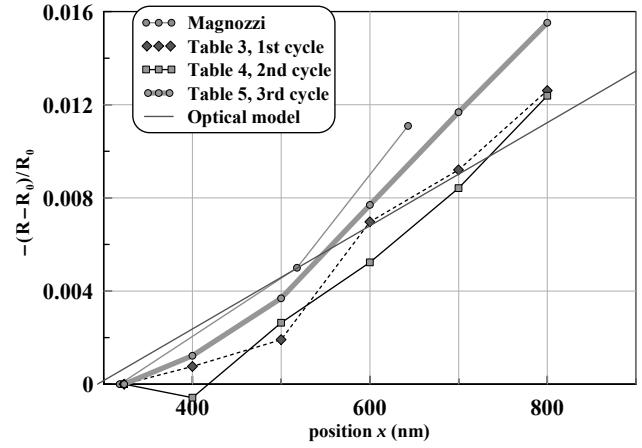


Рис. 24. (В цвете онлайн) Сравнение расчета по нашей оптической модели с данными работ [61, 62]. Зеленая кривая с зелеными круглыми символами взята из статьи [62]. Кривые из таблиц 3, 4 и 5 взяты из этих таблиц в работе [61]. Зависимость, показанная красной линией, представляет нашу модель в 1Т-случае

$$\begin{aligned} B = & \left(1 + \frac{k_2}{k_1}\right) e^{-ik_2 H_2} \left[\left(1 + \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 + \frac{k_4}{k_3}\right) e^{-ik_3 H_3} + \right. \\ & \left. + \left(1 - \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 - \frac{k_4}{k_3}\right) e^{ik_3 H_3} \right] + \\ & + \left(1 - \frac{k_2}{k_1}\right) e^{ik_2 H_2} \left[\left(1 - \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 + \frac{k_4}{k_3}\right) e^{-ik_3 H_3} + \right. \\ & \left. + \left(1 + \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 - \frac{k_4}{k_3}\right) e^{ik_3 H_3} \right]. \end{aligned}$$

С помощью описанной оптической модели проведено преобразование данных 2Т-кода в зависимость TTR от времени. Эта зависимость показана на рис. 15 и 16.

Для проверки модели мы использовали литературные данные — работы [61, 62]. В них изучались изменения в отражательной способности золота при нагревании. Это необходимо для приложений в плазмонике. На рис. 24 показано сравнение разработанной оптической модели с результатами работ [61, 62]. Оптические характеристики вычислялись в 1Т-состояниях с одной температурой $T_e = T_i$. Эта температура отложена по оси абсцисс на рис. 24. Как видим, имеется удовлетворительное согласие.

Результаты, представленные на рис. 24, имеют важное значение для понимания зависимостей α и κ . Попробуем объяснить почему.

Как было показано выше (см. разд. 5–7), на выраженной 2Т-стадии охлаждение поверхности объемной мишени осуществляется, в основном, электронной теплопроводностью. Нам потребовалось снизить коэффициент κ , чтобы добиться согласия с опытом по темпу спада электронной температуры поверхности. Тогда, если пользоваться известными теоретическими значениями для коэффициента α (т. е. достаточно высокими значениями), мы получим высокие значения для ионной температуры на переходе от 2Т- к 1Т-стадии.

Дело в том, что при малых коэффициентах κ слой прогрева получается тонким. В нем сосредоточена поглощенная энергия. И температура этого слоя на 1Т-стадии становится высокой. Это следует из закона сохранения энергии. Произведение толщины слоя прогрева на его температуру пропорционально поглощенной энергии. Чтобы снизить ионную температуру на переходе от 2Т- к 1Т-стадии, необходимо снижение коэффициента α существенно ниже теоретических значений, см. рис. 17.

Из сказанного ясно, насколько важно точное определение температуры поверхности по экспериментально измеренной зависимости TTR на переходе к 1Т-стадии. Поэтому для уверенности в этом необходимо было сопоставление нашей модели с 1Т-опытами. Такое сопоставление представлено на рис. 24.

12. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Работа опирается на эксперимент. В представленном эксперименте модифицирована техника lock-in с целью измерения сигнала TTR при возможно более высоких поглощенных энергиях. Снижение частоты в технике lock-in до 31 Гц позволила в объемных мишенях из золота подняться до температур, близких к температуре плавления золота. В предшествующих опытах предельные температуры в технике lock-in были существенно ниже.

Полученные экспериментальные результаты представляют собой измерения отражающей способности золота после облучения мишени фс-импульсом. Безусловно, данные TTR-измерений являются косвенными свидетельствами протекающих в веществе мишени процессов 2Т-релаксации. Научную ценность представляет интерпретация указанных измерений. Для интерпретации необходимы теоретическая модель и численное моделирование на базе этой модели. Такая модель была создана и расчеты

проведены. Есть две наиболее важные характеристики 2Т-состояний. Это коэффициент теплопроводности κ и коэффициент α , который определяет темп обмена энергией между электронной и ионной подсистемами.

Благодаря данной работе были выяснены следующие обстоятельства.

В объемных мишенях во всем исследованном диапазоне энергий лазерного фс-импульса темп снижения электронной температуры поверхности на 2Т-стадии определяется электронным транспортом поглощенной энергии. При этом охлаждение поверхности за счет коэффициента α имеет место, но играет второстепенную роль. Максимальная электронная температура составляла величину около 20 кК.

Показано, что в диапазоне максимальных электронных температур 10–20 кК имеется существенное уменьшение коэффициента электронной теплопроводности κ по сравнению с его значением в разработанной теории. При более низких температурах теоретический коэффициент κ хорошо описывает ситуацию.

Из обработки опытов аналогичный вывод делается относительно коэффициента α . В диапазоне максимальных электронных температур 10–20 кК коэффициент α значительно меньше, чем значения, следующие из существующих теорий. При низких температурах T_e коэффициент α возвращается к теоретическим значениям.

Возвращение коэффициента α к довольно большим теоретическим значениям при низких температурах T_e , т. е. на 1Т-стадии, позволяет описать медленное снижение температуры в опытах на 1Т-стадии в продолжительном интервале времен (сотни пикосекунд). При заниженных значениях коэффициента α темп снижения температуры на длинном временном интервале получается слишком малым.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант 19-19-00697-П, продленный).

ЛИТЕРАТУРА

1. A. B. Cherepakhin, D. V. Pavlov, I. I. Shishkin et al., Appl. Phys. Lett. **117**, 041108 (2020).
2. S. I. Kudryashov, A. A. Samokhvalov, Ya. D. Golubev et al., Appl. Surf. Sci. **537**, 147940 (2021).
3. K. Kaleris, E. Kaniolakis-Kaloudis, E. Kaselouris et al., Appl. Phys. A **129**, 527 (2023).

4. S. A. Romashevskiy, A. I. Ignatov, V. V. Zhakhovsky et al., *Appl. Surf. Sci.* **615**, 156212 (2023).
5. T. Kawashima, T. Sano, A. Hirose et al., *J. Mater. Process. Technol.* **262**, 111 (2018).
6. U. Trdan, T. Sano, D. Klobcar et al., *Corrosion Sci.* **143**, 46 (2018).
7. Н. А. Иногамов, Е. А. Перов, В. В. Жаховский и др., *Письма в ЖЭТФ* **115**, 80 (2022) [N. A. Inogamov, E. A. Perov, V. V. Zhakhovsky et al., *JETP Lett.* **115**, 71 (2022)].
8. В. А. Хохлов, В. В. Жаховский, Н. А. Иногамов и др., *Письма в ЖЭТФ* **115**, 576 (2022) [V. A. Khokhlov, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov et al., *JETP Lett.* **115**, 523 (2022)].
9. V. Zhakhovsky, Yu. Kolobov, S. Ashitkov et al., *Phys. Fluids* **35**, 096104 (2023).
10. С. И. Анисимов, Б. Л. Капелиович, Т. Л. Перельман, *ЖЭТФ* **66**, 776 (1974) [S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perel'man, *Sov. Phys. JETP* **39**, 375 (1974)].
11. W. S. Fann, R. Storz, H. W. K. Tom, and J. Bokor, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2834 (1992).
12. C.-K. Sun, F. Vallée, L. H. Acioli et al., *Phys. Rev. B* **50**, 15337 (1994).
13. J. Hohlfeld, S.-S. Wellershoff, J. Guedde et al., *Chem. Phys.* **251**, 237 (2000).
14. N. Del Fatti, C. Voisin, M. Achermand et al., *Phys. Rev. B* **61**, 16956 (2000).
15. A. N. Smith and P. M. Norris, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 1240 (2001).
16. P. E. Hopkins, J. M. Klopff, and P. M. Norris, *Appl. Opt.* **46**, 2076 (2007).
17. Yu. V. Petrov, K. P. Migdal, N. A. Inogamov, and V. V. Zhakhovsky, *Appl. Phys. B* **119**, 401 (2015).
18. Ю. В. Петров, К. П. Мигдал, Н. А. Иногамов, С. И. Анисимов, *Письма в ЖЭТФ* **104**, 446 (2016) [Yu. V. Petrov, K. P. Migdal, N. A. Inogamov, and S. I. Anisimov, *JETP Lett.* **104**, 431 (2016)].
19. B. Y. Mueller and B. Rethfeld, *Phys. Rev. B* **87**, 035139 (2013).
20. B. Rethfeld, D. S. Ivanov, M. E. Garcia, and S. I. Anisimov, *J. Phys. D* **50**, 193001 (2017).
21. А. А. Абрикосов, *Основы теории металлов*, Москва, Наука (1987).
22. S. Chapman and T. G. Cowling, *The Mathematical Theory of Non-Uniform Gases*, Cambridge Univ. Press (1970).
23. М. И. Каганов, И. М. Лифшиц, Л. В. Танатаров, *ЖЭТФ* **31**, 232 (1956) [M. I. Kaganov, I. M. Lifshitz, and L. V. Tanatarov, *Sov. Phys. JETP* **4**(2), 173 (1957)].
24. Yu. V. Petrov, *Laser Part. Beams* **23**, 283 (2005).
25. V. V. Temnov, K. Sokolowski-Tinten, P. Zhou, and D. von der Linde, *J. Opt. Soc. Am. B* **23**, 1954 (2006).
26. C. A. Paddock and G. L. Eesley, *J. Appl. Phys.* **60**, 285 (1986).
27. Н. А. Иногамов, В. А. Хохлов, С. А. Ромашевский и др., *Письма в ЖЭТФ* **117**, 107 (2023) [N. A. Inogamov, V. A. Khokhlov, S. A. Romashevskiy et al., *JETP Lett.* **117**, 104 (2023)].
28. V. V. Temnov, C. Klieber, K. A. Nelson et al., *Nature Commun.* **4**, 1468 (2013).
29. F. Akhmetov, I. Milov, S. Semin et al., *Vacuum* **212**, 112045 (2023).
30. K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri et al., *Phys. Rev. Lett.* **81**, 224 (1998).
31. Н. А. Иногамов, В. В. Жаховский, С. И. Ашитков и др., *ЖЭТФ* **134**, 5 (2008) [N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, S. I. Ashitkov et al., *JETP* **107**, 1 (2008)].
32. J. C. Crowhurst, M. R. Armstrong, K. B. Knight et al., *Phys. Rev. Lett.* **107**, 144302 (2011).
33. С. И. Ашитков, П. С. Комаров, М. Б. Агранат и др., *Письма в ЖЭТФ* **98**, 439 (2013) [S. I. Ashitkov, P. S. Komarov, M. B. Agranat et al., *JETP Lett.* **98**, 384 (2013)].
34. N. Hasegawa, M. Nishikino, M. Ishino et al., *Springer Proc. Phys.* **202**, 273 (2018).
35. B. Albertazzi, N. Ozaki, V. Zhakhovsky et al., *Sci. Adv.* **3**, e160270 (2017).

36. M. Z. Mo, Z. Chen, R. K. Li et al., *Science* **360** (6396), 1451 (2018).
37. R. Fang, A. Vorobyev, and Ch. Guo, *Light: Sci. Appl.* **6**, e16256 (2017).
38. Н. А. Иногамов, А. М. Опарин, Ю. В. Петров и др., *Письма в ЖЭТФ* **69**, 284 (1999) [N. A. Inogamov, A. M. Oparin, Yu. V. Petrov et al., *JETP Lett.* **69**, 310 (1999)].
39. В. В. Жаховский, К. Нишихара, С. И. Анисимов, Н. А. Иногамов, *Письма в ЖЭТФ* **71**, 241 (2000) [V. V. Zhakhovskii, K. Nishihara, S. I. Anisimov, and N. A. Inogamov, *JETP Lett.* **71**, 167 (2000)].
40. L. V. Zhigilei and B. J. Garrison, *J. Appl. Phys.* **88**, 1281 (2000).
41. Н. А. Иногамов, Ю. В. Петров, *ЖЭТФ* **137**, 505 (2010) [N. A. Inogamov and Yu. V. Petrov, *JETP* **110**, 446 (2010)].
42. N. A. Smirnov, *Phys. Rev. B* **106**, 024109 (2022).
43. Zh. Lin, L. V. Zhigilei, and V. Celli, *Phys. Rev. B* **77**, 075133 (2008).
44. Н. А. Иногамов, В. В. Жаховский, В. А. Хохлов, *ЖЭТФ* **147**, 20 (2015) [N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, and V. A. Khokhlov, *JETP* **120**, 15 (2015)].
45. С. И. Анисимов, В. В. Жаховский, Н. А. Иногамов и др., *ЖЭТФ* **156**, 806 (2019) [S. I. Anisimov, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov et al., *JETP* **129**, 757 (2019)].
46. М. Е. Povarnitsyn, Т. Е. Itina, Р. Р. Levashov, and К. В. Khishchenko, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 3108 (2013).
47. A. Block, R. Yu, Ieng-Wai Un et al., *ACS Photonics* **10**, 1150 (2023).
48. Ю. В. Петров, Н. А. Иногамов, К. П. Мигдал, *Письма в ЖЭТФ* **97**, 24 (2013) [Yu. V. Petrov, N. A. Inogamov, and K. P. Migdal, *JETP Lett.* **97**, 20 (2013)].
49. S. I. Ashitkov, P. S. Komarov, V. V. Zhakhovsky et al., *J. Phys.: Conf. Ser.* **774**, 012097 (2016).
50. A. Block, M. Liebel, R. Yu et al., *Sci. Adv.* **5**, eaav8965 (2019).
51. M. Segovia and X. Xu, *Nano Lett.* **21**, 7228 (2021).
52. G. Gao, L. Jiang, B. Xue et al., *Small Methods* **7**, 2201260 (2023).
53. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, S. I. Ashitkov et al., *Contrib. Plasma Phys.* **51**, 367 (2011).
54. N. A. Inogamov and V. V. Zhakhovsky, *J. Phys.: Conf. Ser.* **681**, 012001 (2016).
55. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, V. A. Khokhlov et al., *J. Phys.: Conf. Ser.* **774**, 012102 (2016).
56. V. V. Shepelev and N. A. Inogamov, *J. Phys: Conf. Ser.* **946**, 012010 (2018).
57. J. M. Liu, *Opt. Lett.* **7**, 196 (1982).
58. S. I. Kudryashov, A. A. Samokhvalov, Ya. D. Golubev et al., *Appl. Surf. Sci.* **537**, 147940 (2021).
59. S. I. Ashitkov, N. A. Inogamov, P. S. Komarov et al., *High Temp.* **60**, 192 (2022).
60. S. Babar and J. H. Weaver, *Appl. Opt.* **54**, 477 (2015).
61. H. Reddy, U. Guler, A. V. Kildishev et al., *Opt. Mater. Express* **6**, 2776 (2016).
62. M. Magnozzi, M. Ferrera, L. Mattera et al., *Nanoscale* **11**, 1140 (2019).