

## ВЛИЯНИЕ ЭМИССИИ ЭЛЕКТРОНОВ НА НАГРЕВ МЕТАЛЛОВ ФЕМТОСЕКУНДНЫМИ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ

© 2011 г. Е. Б. Яковлев, доктор техн. наук; О. Н. Сергаева; В. В. Свирина

Санкт-Петербургский государственный университет информационных технологий, механики и оптики, Санкт-Петербург

E-mail: yak@lastech.ifmo.ru

Проведено исследование взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов с металлами с учетом электронной, фото- и термоэмиссии, вызывающих кулоновский взрыв из-за накопления избыточного положительного заряда на поверхности мишени и генерации электрического поля. Установлено, что эмиссия оказывает слабое влияние на теплофизические и оптические свойства твердых тел и поэтому ее можно не учитывать при анализе нагрева металлов фемтосекундными лазерными импульсами.

**Ключевые слова:** лазерное нагревание, ультракороткие импульсы, электронная фото- и термоэмиссия, кулоновский взрыв, численное моделирование.

Коды OCIS: 320.2250, 320.7130, 190.4180, 000.3866

Поступила в редакцию 14.02.2011

В связи с развитием лазерных технологий возрастает интерес к процессам, происходящим при воздействии сверхкоротких лазерных импульсов на вещество [1–5]. Однако экспериментальные исследования и аналитическое описание таких процессов вызывают трудности. В такой ситуации большие возможности открывает применение численных методов на базе современной вычислительной техники. В данной работе основное внимание уделено расчету температуры при действии лазерного излучения на вещество. При численном моделировании было учтено, что значительное влияние на динамику температуры оказывает эмиссия электронов, в процессе которой электроны уносят часть энергии, запасенной в электронном газе, и в результате на нагревание решетки идет меньшая энергия.

Так как длительность воздействия при нагревании металлов фемтосекундными лазерными импульсами значительно меньше времени электрон-ионной релаксации, для расчета температуры необходимо использовать двухтемпературную модель, учитывающую перегрев электронной подсистемы относительно фононной. Энергия излучения сначала поглощается свободными электронами и затем передается ионам за счет соударений. Поэтому кристаллическая решетка нагревается уже после окончания импульса.

На рис. 1 приведена схема взаимодействия фемтосекундного лазерного излучения с металлом. При нагревании металлов происходит диффузия свободных электронов из глубины материала к поверхности, а затем их эмиссия. Эмитируемые “горячие” электроны уносят часть энергии, запасенной в электронной подсистеме, тем самым уменьшая ее температуру,

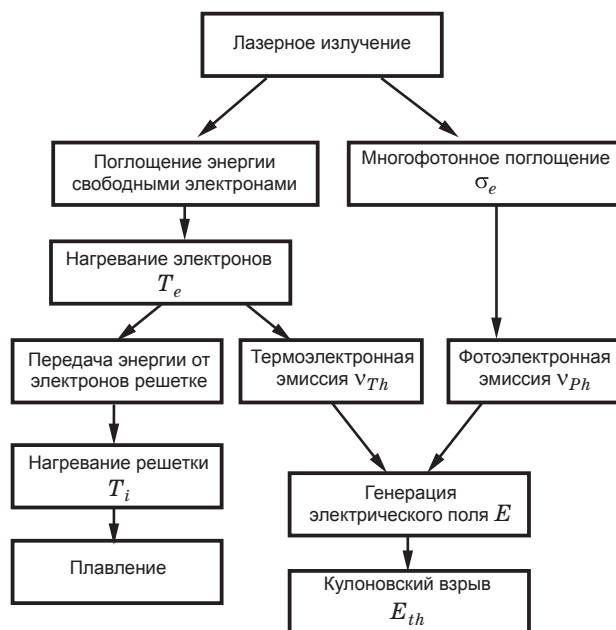


Рис. 1. Взаимодействие лазерного излучения с веществом.

и в конечном итоге температуру тела в целом. Одновременно с этим изменение концентрации электронов в приповерхностной области приводит к изменению оптических характеристик материала. Толщина эмиссионного слоя ограничена длиной свободного пробега электронов, а также зависит от концентрации электронов и коэффициента эмиссии.

Температуру материала при нагревании импульсом фемтосекундной длительности можно определить решая систему, состоящую из уравнений теплопроводности для электронов и фононов (решетки) и уравнения, описывающего изменение концентрации электронов во времени. Уравнения теплопроводности описывают транспорт энергии внутри материала. При расчете динамики концентрации свободных носителей учитывается их диффузия, эмиссия с поверхности и изменение оптических свойств металла.

При нагревании тонких пленок диаметр пучка лазерного излучения (100 мкм) намного больше оптической глубины проникновения (100 нм) и глубины проникновения электронов (~100 нм), следовательно, процесс нагревания можно описать с помощью одномерной модели.

Температуру тела при нагревании фемтосекундными лазерными импульсами можно вычислить при решении системы уравнений, состоящей из уравнений теплопроводности для электронов и решетки:

$$\begin{aligned} c_e(T_e, n_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial x} \left( \lambda_{Te}(T_e, n_e) \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) = \\ = -k_{ei}(T_e, n_e)(T_e - T_i) + q_v, \\ c_i \frac{\partial T_i}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial x} \left( \lambda_{Ti} \frac{\partial T_i}{\partial x} \right) = k_{ei}(T_e, n_e)(T_e - T_i), \end{aligned} \quad (1)$$

где  $q_v$  – поглощенная плотность мощности лазерного излучения.

С начальными и граничными условиями:

$$-\lambda_{Te}(T_e, n_e) \frac{\partial T_e}{\partial x} \Big|_{x=0} = -\lambda_{Ti} \frac{\partial T_i}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0,$$

$$T_e \Big|_{t=0} = T_i \Big|_{t=0} = T_n,$$

где  $T_n$  – начальная температура и уравнения, описывающего изменение концентрации электронов:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \frac{\partial^2 n}{\partial x^2}, \quad (2)$$

с начальными и граничными условиями:

$$n_e \Big|_{t=0} = n_0,$$

где  $n_0 = 10^{23} \text{ см}^{-3}$ ,

$$n_e \Big|_{x=x_{\max}} = n_0,$$

$$D \frac{\partial n}{\partial x} \Big|_{x=0} = -v_e,$$

где

$$v_e = v_e^{\text{Th}} + v_e^{\text{Ph}},$$

$v_e^{\text{Th}} = BT^2 \exp(A_B/(k_b T)) \exp(x/l_e)/q_e$  – скорость термоэмиссии электронов, где  $B$  – коэффициент Ричардсона ( $120 \text{ А/см}^2 \text{ К}^2$ ),  $A_B$  – работа выхода электронов,  $l_e$  – длина свободного пробега электронов,  $q_e$  – заряд электрона.

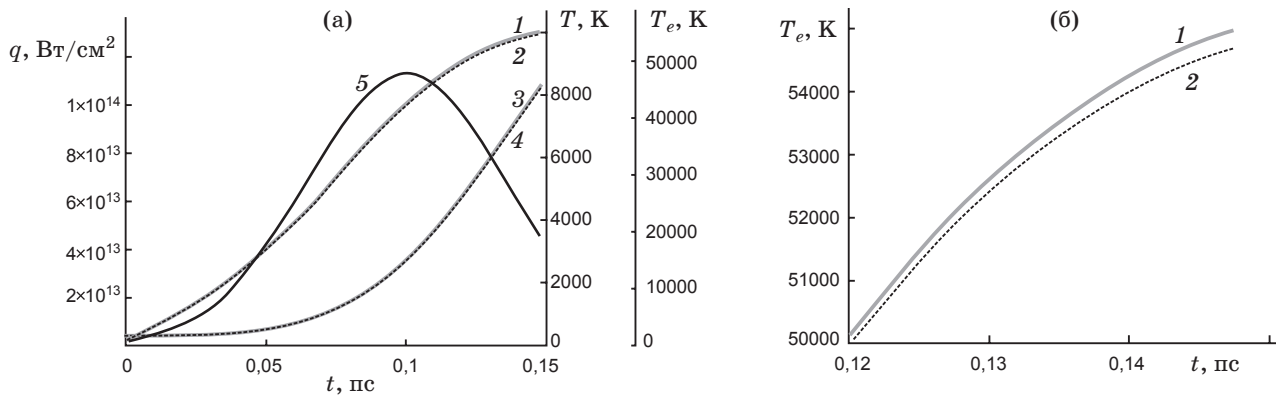
При расчете фотоэмиссии считаем, что все свободные электроны, участвующие в многофотонном процессе и достигшие поверхности без потери энергии, покидают металл. Для трехфотонного поглощения имеем:

$$v_e^{\text{Ph}} = \int_0^\infty \sigma_3 J^3 \exp(-x/l_e) dx$$

– скорость фотоэмиссии электронов ( $\text{см}^3/\text{с}$ ),  $\sigma_3$  – сечение трехфотонного поглощения.

В литературе значений сечений многофотонного поглощения для металлов найти не удалось, поэтому мы использовали следующий способ оценки их значений. Сечение однофотонного поглощения  $\sigma_1$  для металлов может быть определено при известных коэффициенте поглощения  $\alpha$  и концентрации свободных электронов  $n$  как  $\sigma_1 = \alpha/n$ . Оценивая время жизни на виртуальном уровне  $\tau_0 \sim 10^{-16} \text{ с}$  [3], можно определить концентрацию электронов на первом виртуальном уровне  $n_1 = n \sigma_1 \tau_0 J$ . Считая сечение поглощения возбужденных электронов равным  $\sigma_1$ , получим  $\sigma_2 = \sigma_1^2 n \tau_0$ . Рассуждая аналогично, придем к  $\sigma_3 = \sigma_1^3 n \tau_0^2$ . Для  $m$ -фотонного поглощения  $\sigma_m = \sigma_1^m n \tau_0^{m-1}$ .

При расчете динамики концентрации свободных носителей учитываются зависимости теплофизических [4] и оптических свойств материала от температуры и концентрации электронов: электронная теплоемкость  $c_e = 3nk_b/2$ , теплопроводность электронов  $\lambda_{Te} = v_e^2 \tau_{ee} c_e/3$ , коэффициент теплообмена между электронами и решеткой  $k_{ei} = c_e/t_{\text{rel}}$ , скорость электронов  $v_e = \sqrt{(3k_b T/m_e)}$ , длина свободного пробега электронов  $l_e = (1/n_e \sigma \sqrt{2})$ . Зависимость коэффициента поглощения от концентрации сво-



**Рис. 2.** Зависимости температуры с учетом эмиссии и без нее от времени. Форма импульса  $q = q_m \exp(-(t - t_m)^2/t_{m1}^2)$ ,  $t_m = 100$  фс,  $t_{m1} = 50$  фс, максимальная плотность мощности  $q_m = 5 \times 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>,  $T$  (3),  $T$  (1) – температуры решетки и электронов без учета эмиссии;  $T^{\text{emis}}$  (2),  $T_e^{\text{emis}}$  (4) – то же с учетом эмиссии (а); увеличенный участок зависимости электронной температуры с учетом эмиссии (2) и без нее (1) от времени (б); (5) – лазерный импульс.

бодных электронов:  $\alpha(n) = (\alpha/n_n)n$ , где  $n_n$  – начальная концентрация свободных электронов.

Эмиссия электронов приводит к накоплению положительного заряда на поверхности металла и к возникновению электрического поля. Для расчета электрического поля, создаваемого в результате нарушения квазинейтральности в облученной области, решается уравнение [5]:

$$\frac{\partial E}{\partial x} = (q_e / (\epsilon \epsilon_0))(n_i - n_e). \quad (3)$$

Поле, возникшее вследствие разделения зарядов, может достигать значений, превышающих энергию связи атомов, что и приводит к кулоновскому взрыву. Для определения начала кулоновского взрыва электрическое поле (3) сравнивается с критической напряженностью, необходимой для удаления атома из мишени:

$$E_{\text{th}}|_{x=0} = \sqrt{2\Lambda_{at}n_0 / (\epsilon \epsilon_0)}, \quad (4)$$

где  $n_0$  – концентрация атомов, см<sup>-3</sup>,  $\Lambda_{at} = 2,951$  Дж/атом – теплота сублимации,  $\epsilon$  – относительная диэлектрическая проницаемость металла,  $\epsilon_0 = 8,854 \times 10^{-14}$  – электрическая постоянная, Ф/см.

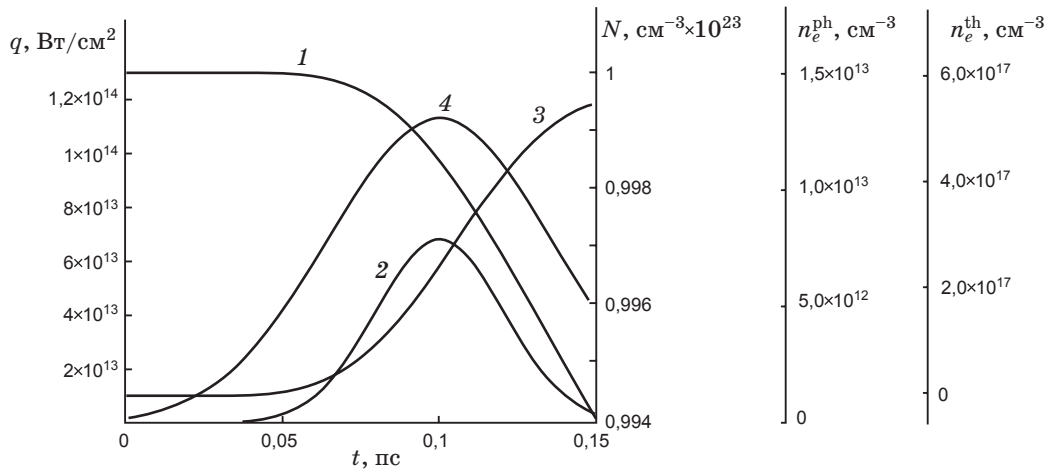
Для численного решения уравнения теплопроводности и уравнения, описывающего изменение концентрации электронов, представляющих собой нестационарные дифференциальные уравнения в частных производных, был выбран метод разностной аппроксимации. Для расчета значений температуры и концентрации использовалась разностная схема. Не-

смотря на достаточно высокую скорость расчета благодаря использованию явных формул, данная схема обладает серьезным недостатком – необходимо выполнение условия устойчивости, накладывающего ограничение на величину шагов разбиений по координате и времени.

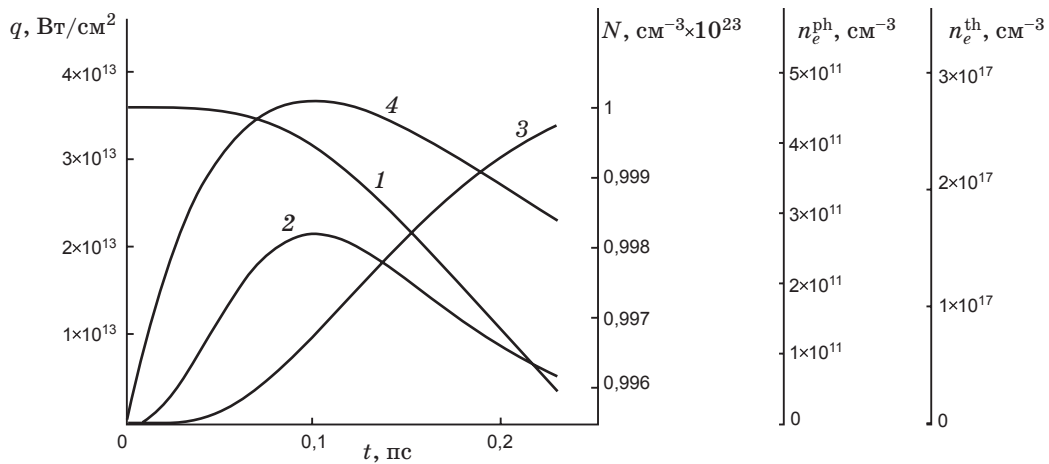
Здесь приведены результаты расчета для сребра, форма импульса  $q = q_m \exp(-(t - t_m)^2/t_{m1}^2)$ ,  $t_m = 100$  фс,  $t_{m1} = 50$  фс,  $A_B = 4,28$  эВ. При  $\hbar\omega = 1,55$  эВ поглощение трехфотонное. Расчет проводился до момента начала кулоновского взрыва, когда возникшее из-за разделения зарядов электрическое поле превышает пороговое значение, необходимое для отрыва атомов. Для сравнения проведено моделирование нагревания без учета эмиссии, но с учетом зависимостей характеристик материала от температуры.

Из рис. 2 видно, что температура электронов и решетки растут, но не достигают максимума в течение импульса. Различие температур, рассчитанных с учетом эмиссии и без нее невелико и в момент начала кулоновского взрыва  $t = 0,15$  пс ( $T_e^{\text{emission}} - T_e$ )  $\approx 290$  К (рис. 2б), ( $T^{\text{emission}} - T$ )  $\approx 60$  К.

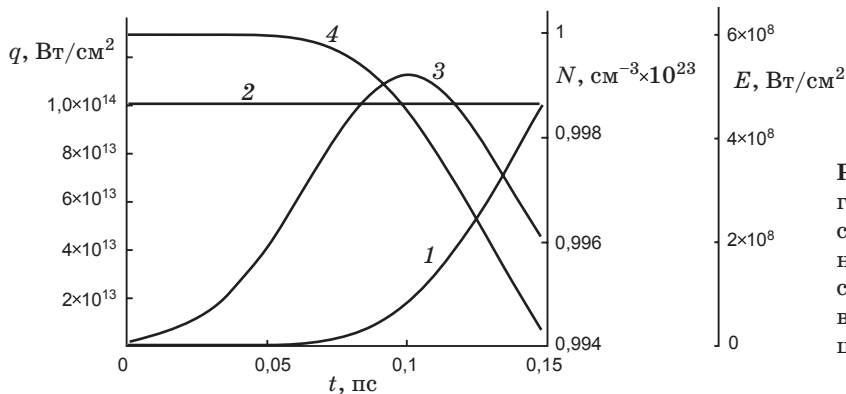
На рис. 3 показано изменение полной концентрации свободных электронов, а также количество электронов, вылетающих за счет фото- и термоэмиссии. На начальном этапе действия импульса преобладает фотоэмиссия, которая по форме близка к форме импульса (отличия вызваны нелинейностью эффектов), но температура электронов быстро увеличивается, а вместе с ней и термоэлектронная эмис-



**Рис. 3.** Зависимость концентрации электронов (1) и концентраций эмитируемых за счет фото- ( $n_e^{ph}$ ) (2) и термоэмиссии ( $n_e^{th}$ ) (3) электронов от времени. Форма импульса  $q = q_m \exp(-(t - t_m)^2/t_{m1}^2)$ ,  $t_m = 100$  фс,  $t_{m1} = 50$  фс (4).



**Рис. 4.** Зависимость концентрации электронов (1) и концентраций эмитируемых за счет фото- ( $n_e^{ph}$ ) (2) и термоэмиссии ( $n_e^{th}$ ) (3) электронов от времени. Форма импульса  $q = q_m(t/t_m)\exp(-t/t_m)$ ,  $t_m = 100$  фс (4).

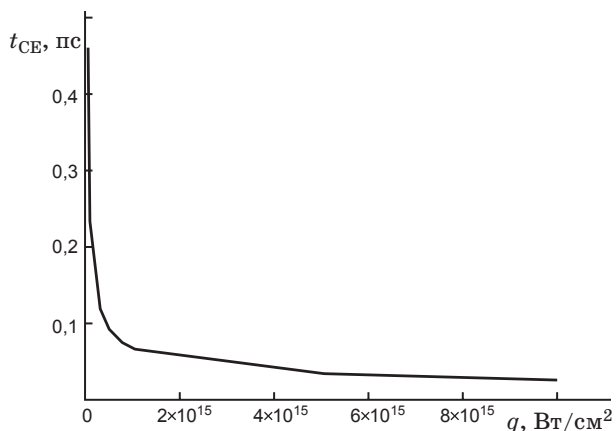


**Рис. 5.** Зависимость электрического поля  $E$  (1), возникающего вследствие эмиссии электронов от времени. Пороговое значение поля  $E_{th}$  (2) соответствует началу кулоновского взрыва. Форма импульса (3), концентрация электронов (4).

сия, которая начинает преобладать над фотоэмиссией.

На рис. 3–5 приведены временные зависимости концентрации электронов при различных формах импульса. Максимальная фотоэмиссия соответствует максимальной плотности мощ-

ности. Видно, что форма импульса существенным образом влияет на динамику процессов. Градиент концентрации электронов приводит к возникновению электрического поля, которое растет и достигает порогового значения, начинается кулоновский взрыв.



**Рис. 6.** Зависимость времени начала кулоновского взрыва от плотности мощности лазерного излучения. Форма импульса  $q = q_m(t/t_m)\exp(-t/t_m)$ ,  $t_m = 100$  фс.

На рис. 6 показана зависимость времени начала кулоновского взрыва от плотности мощности лазерного излучения, видно, что зависимость нелинейна.

## Заключение

В работе проведен анализ влияния эмиссии электронов на процессы нагревания и разрушения металлов, предложена методика оценки сечений многофотонного поглощения в металлах, показано, что эмиссия оказывает слабое влияние на теплофизические и оптические свойства металла и, следовательно, на динамику температуры, поэтому ее можно не учитывать при анализе нагревания металлов фемтосекундным лазерным импульсом.

Полученные результаты показывают, что к моменту возникновения кулоновского взрыва достигаются такие высокие температуры, при которых анализ следует проводить на основе модели, учитывающей состояние вещества [6, 7].

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ 09-02-00932-а, 09-02-01065-а, 10-02-00208-а и государственного контракта № П1134.

\* \* \* \* \*

## ЛИТЕРАТУРА

1. Rethfeld B., Kaiser A., Vicanek M., Simon G. Ultrafast dynamics of nonequilibrium electrons in metals under femtosecond laser irradiation // Phys. Rev. B. 2002. V. 65. P. 214303–214313.
2. Rethfeld B., Kaiser A., Vicanek M., Simon G. Nonequilibrium electron and phonon dynamics in solids absorbing a subpicosecond laser pulse // Proc. of SPIE. 2001. V. 4423. P. 250–261.
3. Делоне Н.Б. Многофотонные процессы. Соросовский образовательный журнал. 1996. № 3. С. 75–81.
4. Tsai Hai-Lung, Jiang Lan Fundamentals of energy cascade during ultrashort laser-material interactions // Proc. of SPIE. 2005. V. 5713. P. 343–357.
5. Bulgakova N.M., Rosenfeld A., Ehrentraut L., Stoian R., Hertel I.V. Modeling of electron dynamics in laser-irradiated solids: Progress achieved through a continuum approach and future prospects // Proc. of SPIE. 2007. V. 6732. P. 673208–673223.
6. Anisimov S.I., Inogamov N.A., Petrov Y.V., Khokhlov V.A., Zhakhovskii V.V., Nishihara K., Agranat M.B., Ashitkov S.I., Komarov P.S. Thresholds for front-side ablation and rear-side spallation of metal foil irradiated by femtosecond laser pulse // Appl Phys A. 2008. V. 92. P. 797–801.
7. Upadhyay A.K., Inogamov N.A., Rethfeld B., Urbassek H.M. Ablation by ultrashort laser pulses: Atomistic and thermodynamic analysis of the processes at the ablation threshold // Phys. Rev. B. 2008. V. 78. P. 045437-1–045437-10.