ЖЭТФ, 2015, том 147, вып. 6, стр. 1087–1097 

# ОТРАЖЕНИЕ ПРОБНОГО ИМПУЛЬСА И ТЕРМОЭМИССИЯ ЭЛЕКТРОНОВ ПРИ НАГРЕВЕ ПЛЕНКИ АЛЮМИНИЯ ФЕМТОСЕКУНДНЫМ ИМПУЛЬСОМ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

*С. Г. Бежанов*[a,b], *А. А. Ионин*[a], *А. П. Канавин*[a,b], *С. И. Кудряшов*[a,b], *С. В. Макаров*[a], *Л. В. Селезнев*[a], *Д. В. Синицын*[a], *С. А. Урюпин*[a,b *]

[a] *Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук*
*119991, Москва, Россия*

[b] *Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»*
*115409, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 24 октября 2014 г.

Показано, что установленное экспериментально уменьшение коэффициента отражения пробного фемтосекундного импульса пленкой алюминия, нагреваемой более мощным фемтосекундным импульсом, допускает количественное описание в рамках подхода, учитывающего неоднородное распределение поля лазерного импульса в пленке и эволюцию температур электронов и решетки при поглощении греющего неоднородного поля. Анализ эволюции температуры электронов на облучаемой поверхности пленки, дополненный современными представлениями о влиянии приповерхностного объемного заряда на процесс термоэмиссии, позволил установить соответствие количества эмитированных электронов с данными эксперимента, полученными при нагреве пленки алюминия фемтосекундным импульсом.

**DOI**: 10.7868/S0044451015060026

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Исследования сильно неравновесных состояний электронов в металлах, которые образуются при взаимодействии с ультракороткими импульсами лазерного излучения, представляют значительный интерес в связи с выявлением предельных возможностей структурирования поверхности — т. е. создания регулярных наноструктур малого размера (см., например, [1–5]). При этом значительное внимание уделялось экспериментальному изучению оптических свойств объемных металлов, в скин-слое которых состояние электронов далеко от равновесного. Обычно такие эксперименты проводились с использованием возбуждающего и пробного импульсов с варьированием времени задержки зондирующего импульса [6–9]. Обнаруженные в большинстве экспериментов особенности поглощения фемтосекундных импульсов получили объяснение в рамках подхода, учитывающего быстрый нагрев электронов в скин-слое, их последующее охлаждение вследствие выноса тепла из скин-слоя, а также передачу энергии решетке [10–12]. Столь же детальное описание эволюции температуры электронов позволило интерпретировать и установленные экспериментально закономерности термоэмиссии электронов из массивных металлических образцов, нагреваемых при поглощении фемтосекундного импульса [13, 14]. При рассмотрении физических характеристик быстро нагреваемых массивных металлов установлено, что воздействие греющих не аномально коротких импульсов можно описывать используя уравнения поля и уравнения для температур электронов и решетки. Существенно, что в рамках такого подхода можно изучить эволюцию неоднородного профиля температур и описать влияние неоднородности температуры как на оптические, так и на эмиссионные характеристики металла [11, 15]. Такой же подход продуктивен и при описании свойств не слишком тонких металлических пленок [16–18]. Если же толщина пленки сравнима с длиной свободного пробега электронов, то необходимо привлекать кинетическое описание динамики электронов, позволяющее рассмот-

*E-mail: uryupin@sci.lebedev.ru

реть баллистический перенос неравновесных электронов.

В настоящей работе представлены результаты экспериментального изучения коэффициента отражения и термоэмиссии электронов, полученные при нагреве пленки алюминия фемтосекундным импульсом лазерного излучения. Измерения коэффициента отражения пробного импульса пленкой, нагреваемой фемтосекундным импульсом $p$-поляризованного излучения, выполнены при различных задержках пробного импульса. В случае, когда время задержки не превышает 500–600 фс, данные эксперимента хорошо согласуются с теоретическим описанием, учитывающим неоднородное распределение греющего и пробного полей по толщине пленки, эволюцию неоднородного распределения температуры электронов и температуры решетки. В рамках этого же теоретического подхода описана эволюция температуры электронов на облучаемой поверхности пленки, что позволило получить приемлемое соответствие теории и данных эксперимента по измерению числа электронов эмиссии в условиях нагрева пленки фемтосекундным импульсом, падающим нормально на поверхность пленки и имеющим плотность потока излучения в интервале от $10^{12}$ Вт/см$^2$ до $3 \cdot 10^{12}$ Вт/см$^2$.

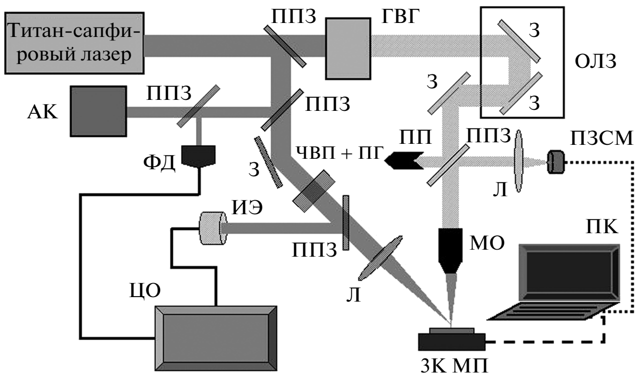


**Рис. 1.** Схема экспериментальной установки с модулем для оптической микроскопии с временным разрешением. ППЗ — полупрозрачные зеркала, делители пучка, АК — автокоррелятор, ЧВП+ПГ — четвертьволновая пластина и призма Глана для ослабления ультракороткого импульса, ИЭ — измеритель энергии, ГВГ — генератор второй гармоники, ОЛЗ — оптическая линия задержки, ПП — поглотитель, З — зеркала, Л — линзы, ФД — фотодиод, ПЗСМ — ПЗС-матрица, 3К МП — трехкоординатная моторизованная микроплатформа, ЦО — цифровой осциллограф, ПК — компьютер для сбора данных и управления экспериментом, МО — микрообъектив

## 2. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

В эксперименте воздействие на пленку алюминия толщиной 30 нм, размещенную на стеклянной подложке, осуществлялось ультракороткими импульсами излучения титан-сапфирового лазера. Длина волны лазерного излучения — 800 нм, длительность импульса на полувысоте $\tau_{las} \approx 100$ фс, энергия импульса в $TEM_{00}$-моде — до нескольких миллиджоулей, а частота следования импульсов — 10 Гц. Использование электромеханического затвора и перемещение мишени от импульса к импульсу на трехкоординатной моторизованной микроплатформе (см. рис. 1) позволяло облучать свежие участки пленки. С помощью четвертьволновой пластины и призмы Глана энергия лазерного импульса изменялась плавно от 0.2 мДж до меньших значений. При таких энергиях не происходило деградации волнового фронта импульса вследствие самофокусировки в воздухе, поскольку для импульса длительностью 100 фс мощность составляла не более 2 ГВт, что меньше критической мощности самофокусировки для длины волны используемого излучения, приблизительно равной 3 ГВт [19].

При выполнении оптических измерений отражательной способности алюминиевой пленки в схеме оптической микроскопии с временным разрешением греющий ультракороткий импульс инфракрасного $p$-поляризованного излучения, распространяющегося под углом 45° к поверхности пленки, фокусировался стеклянной линзой с фокусным расстоянием $f = 50$ см в эллиптическое пятно, имеющее радиусы $\varnothing_{1/e,x} \approx 64$ мкм и $\varnothing_{1/e,y} \approx 40$ мкм, с центровкой на оптической оси микрообъектива, используемого для активного зондирования поверхности пробным ультракоротким импульсом (см. рис. 1). Числовая апертура микрообъектива $NA = 0.17$. Для измерений коэффициента отражения использовался в десять раз более слабый пробный ультракороткий импульс длительностью 100 фс, генерируемый в виде второй гармоники в кристалле бората бария толщиной 1.5 мм. Тем самым длина волны пробного излучения составила 400 нм. Время задержки $\Delta t$ пробного импульса варьировалось в интервале от $-0.1$ пс до 3 пс. Пики интенсивности греющего и пробного импульсов совпадают при $\Delta t = 0$. Коэффициент отражения пробного импульса пленкой алюминия откалиброван расчетным путем в предположении, что

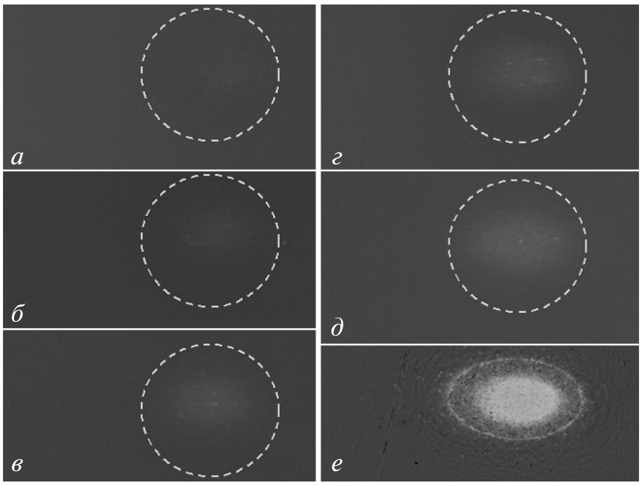


**Рис. 2.** Снимки поверхности алюминиевой пленки, фотовозбужденной падающим под углом $45^\circ$ импульсом накачки, для различных задержек пробного импульса: $-0.1$ (*а*), 0 (*б*), 0.1 (*в*), 0.2 (*г*), 0.7 (*д*), $\infty$ (*е*) пс. Размеры снимка — $300 \times 500$ мкм

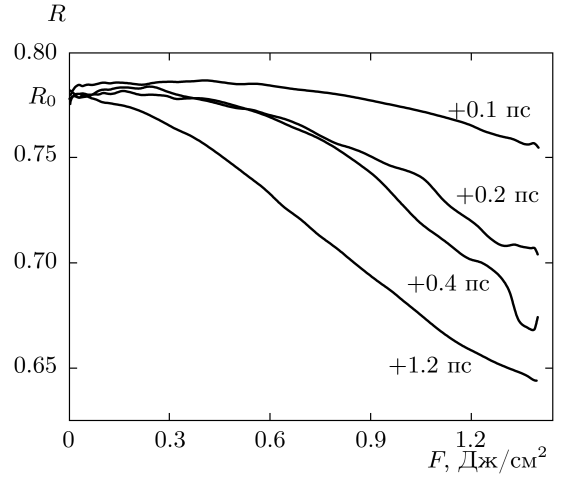


**Рис. 3.** Экспериментальные зависимости коэффициента отражения $R$ от плотности энергии $F$ для различных значений оптической задержки пробного импульса, $R_0$ — начальное значение коэффициента отражения пленки алюминия

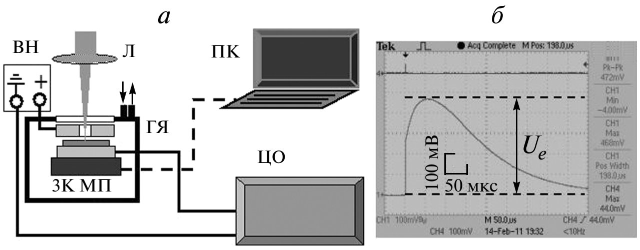


**Рис. 4.** *а*) Часть экспериментальной установки с модулем электронно-эмиссионных измерений. ГЯ — газовая ячейка с подвижкой, электродами и мишенью для электронно-эмиссионных измерений, ВН — источник высокого напряжения. Остальные обозначения те же, что на рис. 1. *б*) Осциллограмма тока изображения при собирающем напряжении $+150$ В и плотности энергии $F \approx 0.6$ Дж/см$^2$

коэффициент отражения стандартного алюминиевого зеркала на длине волны 400 нм при нормальном падении приблизительно равен 0.92 [20]. Снимки области поверхности пленки, фотовозбужденной греющим ультракоротким импульсом накачки, в отраженном свете пробного импульса для его различных задержек представлены на рис. 2. Разрез области фотовозбуждения по линии, проходящей через ее центр, дает зависимость коэффициента отражения мишени $R$ от расстояния от центра пятна или, с учетом известных параметров фокусировки греющего импульса, зависимость от плотности энергии $F$. Типичные зависимости $R$ от $F$ представлены на рис. 3.

При изучении количества эмитированных электронов стационарный медный собирающий электрод с отверстием диаметром около 4 мм и потенциалом +(0–300) В располагался в откачиваемой газовой ячейке на расстоянии 1 мм от поверхности алюминиевой пленки, расположенной на поверхности заземленного электрода. Пленка и электроды расположены на трехкоординатной моторизованной микроплатформе (см. рис. 4) [21]. Падающий нормально ультракороткий импульс накачки через оптическое окно газовой ячейки фокусировался на поверхность пленки на оси апертуры коллектора электронов. При атмосферном давлении эмитированные электроны на наносекундном масштабе времени «прилипали» к молекулам кислорода [22] и далее медленно двигались в приложенном электрическом поле на субмиллисекундных временах, как отрицательные ионы, наводя на коллекторе ток изображения, регистрируемый с помощью мегаомного входного сопротивления цифрового осциллографа (см. рис. 4). Относительно большое давление воздуха и эффект «прилипания» электронов позволяли создавать для сбора электронов большие экстрагирующие напряженности поля порядка 1 кВ/см, что на два–три порядка выше характерных значений для вакуумных экспериментов. Отметим, что в условиях высокого вакуума экстрагирующее поле обычно не превосходит 1–10 В/см, что позволяет избежать вторичной электронной эмиссии.

Прежде чем обсуждать экспериментальные зависимости, в разд. 3 и 4 остановимся на необходимых обобщениях теории применительно к описанию свойств греющейся пленки металла.

## 3. ОТРАЖЕНИЕ, ПРОПУСКАНИЕ И ПОГЛОЩЕНИЕ ИМПУЛЬСА ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Примем, что на однородную металлическую пленку, занимающую область пространства $0 < z < L$, из вакуума под углом $\theta$ к нормали падает лазерный импульс $p$-поляризованного излучения, магнитное поле которого $\mathbf{B}_i = (0, B_i, 0)$ имеет вид

$$B_i = B_i\left(t - \frac{\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}{\omega}\right) = B_0\left(t - \frac{\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}{\omega}\right) \times \times \sin(\omega t - \mathbf{k}\cdot\mathbf{r}), \quad z < 0, \tag{1}$$

где $\omega$ — основная частота излучения, $\mathbf{k} = (\omega/c)(\sin\theta, 0, \cos\theta)$, $c$ — скорость света, $B_0(t)$ — слабо изменяющаяся за время порядка $1/\omega$ огибающая импульса. При воздействии на пленку электромагнитного импульса поле проникает в металл, отражается от поверхности $z = 0$ и частично проходит в область $z > L$, занимаемую веществом с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_s$. Проникающие внутрь поля

$$\mathbf{E}_m \equiv \mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t) = (E_{mx}(\mathbf{r}, t), 0, E_{mz}(\mathbf{r}, t)),$$

$$\mathbf{B}_m = (0, B_m(\mathbf{r}, t), 0)$$

являются решением уравнений

$$\operatorname{rot}\mathbf{E}_m = -\frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{B}_m, \tag{2}$$

$$\operatorname{rot}\mathbf{B}_m = \frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{D}_m + \frac{4\pi}{c}\mathbf{j}, \quad 0 < z < L. \tag{3}$$

Считая плотность потока воздействующего на металл излучения сравнительно малой, для определения плотности тока $\mathbf{j} = \mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$ в формуле (3) воспользуемся простейшим материальным уравнением:

$$\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{j} = -\nu\mathbf{j} + \frac{ne^2}{m}\mathbf{E}_m, \tag{4}$$

где $\nu = \nu(z, t)$ — частота столкновений электронов, $n$, $e$ и $m$ — соответственно плотность, заряд и эффективная масса электрона. При написании уравнения (4) принято, что характерный пространственный масштаб изменения поля больше, чем $v_F/|\omega + i\nu|$, где $v_F$ — скорость Ферми. Для однородной пленки в уравнении (3) связь электрической индукции $\mathbf{D}_m = \mathbf{D}_m(\mathbf{r}, t)$ с полем $\mathbf{E}_m$ дается соотношением

$$\mathbf{D}_m(\mathbf{r}, t) = \int_{-\infty}^{t} \varepsilon_0(t - t')\mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t')\, dt', \tag{5}$$

где вид функции $\varepsilon_0(t - t')$ зависит от свойств решетки и связанных электронов.

В условиях малости частоты столкновений электронов по сравнению с несущей частотой, когда $\nu(z, t) \ll \omega$, можно пренебречь слагаемым $\nu\mathbf{j}$ в уравнении (4). Тогда для плотности тока имеем

$$\mathbf{j}_0(\mathbf{r}, t) = \frac{\omega_p^2}{4\pi}\int_{-\infty}^{t} \mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t')\, dt', \tag{6}$$

где $\omega_p = \sqrt{4\pi ne^2/m}$ — плазменная частота. Отметим, что при $\mathbf{j} = 0$ и $\mathbf{D}_m = \mathbf{E}_m$ уравнения (2) и (3) описывают поле в отраженном импульсе, а при $\mathbf{j} = 0$ и $\mathbf{D}_m = \varepsilon_s\mathbf{E}_m$ — в прошедшем. В силу однородности пленки интересуясь воздействием сравнительно слабого излучения, при решении уравнений (2) и (3) с дополнительными соотношениями (5) и (6) можно воспользоваться преобразованием Фурье по координате $x$. Отвлекаясь от обсуждения эффектов, связанных с включением поля, используем и преобразование Фурье по времени $t$. После этих преобразований получаем систему уравнений для фурье-образов полей в металле и вакууме. Удовлетворяющее условиям непрерывности тангенциальных компонент электрического и магнитного полей при $z = 0$ и $z = L$ решение такой системы позволяет найти фурье-образы, а затем и сами поля (подробнее см. [17]). В том случае, когда характерное время воздействия импульса $t_p \gg 1/\omega$, а функция $\varepsilon_0(\omega)$ (см. ниже (11)) не имеет особенностей в окрестности частоты $\omega$, при восстановлении полей по их фурье-образам основной вклад в интегралы дают частоты близкие к $\omega$. Принимая во внимание этот факт, для магнитных полей отраженного $\mathbf{B}_r = (0, B_r, 0)$ и прошедшего $\mathbf{B}_t = (0, B_t, 0)$ импульсов приближенно имеем

$$B_r = R(\omega)B_0\left(t - \frac{\mathbf{k}'\cdot\mathbf{r}}{\omega}\right) \times \times \sin(\omega t - \mathbf{k}'\cdot\mathbf{r}), \quad z < 0, \tag{7}$$

$$B_t = T(\omega)B_0\left(t - \frac{\mathbf{k}''\cdot\mathbf{r}}{\omega}\right) \times \times \sin(\omega t - \mathbf{k}''\cdot\mathbf{r}), \quad z > L, \tag{8}$$

где

$$\mathbf{k}' = \frac{\omega}{c}(\sin\theta, 0, -\cos\theta),$$

$$\mathbf{k}'' = \frac{\omega}{c}\left(\sin\theta, 0, \sqrt{\varepsilon_s - \sin^2\theta}\right),$$

а комплексные коэффициенты отражения $R(\omega)$ и прохождения $T(\omega)$ описываются соотношениями

$$R(\omega) = -1 - \left\{2\omega\varepsilon(\omega)\cos\theta \times \right. \\ \times \left.\left[\omega\varepsilon(\omega)\sqrt{\varepsilon_s - \sin^2\theta}\,\mathrm{sh}(\kappa L) + i\kappa c\varepsilon_s\,\mathrm{ch}(\kappa L)\right]\right\} \times \\ \times \left\{\left[\varepsilon_s\kappa^2c^2 - \varepsilon^2(\omega)\omega^2\cos\theta\sqrt{\varepsilon_s - \sin^2\theta}\right]\mathrm{sh}(\kappa L) - \right. \\ \left. - i\kappa c\omega\varepsilon(\omega)\left(\varepsilon_s\cos\theta + \sqrt{\varepsilon_s - \sin^2\theta}\right)\mathrm{ch}(\kappa L)\right\}^{-1}, \quad (9)$$

$$T(\omega) = -2\omega\varepsilon(\omega)\varepsilon_s i\kappa c\cos\theta \times \\ \times \exp\left[-i\omega\sqrt{\varepsilon_s - \sin^2\theta}\,\frac{L}{c}\right] \times \\ \times \left\{\left[\varepsilon_s\kappa^2c^2 - \varepsilon^2(\omega)\omega^2\cos\theta\sqrt{\varepsilon_s - \sin^2\theta}\right]\mathrm{sh}(\kappa L) - \right. \\ \left. - i\kappa c\omega\varepsilon(\omega)\left(\varepsilon_s\cos\theta + \sqrt{\varepsilon_s - \sin^2\theta}\right)\mathrm{ch}(\kappa L)\right\}^{-1}. \quad (10)$$

При написании выражений (9) и (10) использованы обозначения

$$\varepsilon(\omega) \equiv \varepsilon(\omega, \nu = 0) = \varepsilon_0(\omega) - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}, \\ \varepsilon_0(\omega) = \varepsilon_0^*(-\omega) = \int_0^\infty \varepsilon_0(t)\exp(i\omega t)\,dt, \quad (11) \\ \kappa^2 = \left[\sin^2\theta - \varepsilon(\omega)\right]\frac{\omega^2}{c^2}.$$

В свою очередь, для полей внутри пленки имеем

$$\mathbf{B}_m = F(z,\omega)B_0\left(t - \frac{x}{c}\sin\theta\right)\mathbf{e}_y, \quad (12)$$

$$\mathbf{E}_m = \frac{1}{2i}B_0\left(t - \frac{x}{c}\sin\theta\right)\exp\left[i\omega\left(t - \frac{x}{c}\sin\theta\right)\right] \times \\ \times \frac{1}{\varepsilon(-\omega)}\left[i\mathbf{e}_x\frac{\partial}{\partial z}F(z,-\omega)\frac{c}{\omega} - \mathbf{e}_z\sin\theta F(z,-\omega)\right] + \\ + \text{c.c.}, \quad (13)$$

где $\mathbf{e}_x$, $\mathbf{e}_y$, $\mathbf{e}_z$ — единичные векторы, а функция $F(z,\omega) = F^*(z,-\omega)$ имеет вид

$$F(z,\omega) = 2\omega\varepsilon(\omega)\cos\theta \times \\ \times \left\{\omega\varepsilon(\omega)\sqrt{\varepsilon_s - \sin^2\theta}\,\mathrm{sh}[\kappa(z-L)] - \right. \\ \left. - i\varepsilon_s\kappa c\,\mathrm{ch}[\kappa(z-L)]\right\} \times \\ \times \left\{\left[\varepsilon_s\kappa^2c^2 - \varepsilon^2(\omega)\omega^2\cos\theta\sqrt{\varepsilon_s - \sin^2\theta}\right]\mathrm{sh}(\kappa L) - \right. \\ \left. - i\kappa c\omega\varepsilon(\omega)\left(\varepsilon_s\cos\theta + \sqrt{\varepsilon_s - \sin^2\theta}\right)\mathrm{ch}(\kappa L)\right\}^{-1}. \quad (14)$$

Соотношения (5) и (13) позволяют найти энергию $Q_0(z,t)$, поглощаемую связанными электронами и решеткой в единицу времени в единице объема. Принимая во внимание неравенство $\omega t_p \gg 1$ и отсутствие особенностей функции $\varepsilon_0(\omega)$ в окрестности частоты $\omega$, после усреднения выражения $(c/4\pi)\mathbf{E}_m\partial\mathbf{D}_m/\partial t$ по интервалу времени от $t$ до $t + 2\pi/\omega$, находим

$$Q_0(z,t) \approx \frac{Im\varepsilon_0(\omega)}{\omega|\varepsilon(\omega)|^2}cI_0\left(t - \frac{x\sin\theta}{c}\right) \times \\ \times \left[\left|\frac{\partial F(z,\omega)}{\partial z}\right|^2 + \frac{\omega^2\sin^2\theta}{c^2}|F(z,\omega)|^2\right], \quad (15)$$

где $I_0(t) = cB_0^2(t)/8\pi$ — плотность потока энергии в падающем импульсе.

Наличие малой частоты столкновений электронов, изменяющейся в пространстве и времени из-за нагрева металла при поглощении импульса, приводит согласно (4) к возникновению малой поправки к плотности тока $\mathbf{j}_0(\mathbf{r},t)$ (6):

$$\delta\mathbf{j}(\mathbf{r},t) = -\int_{-\infty}^{t}\nu(z,t')\mathbf{j}_0(\mathbf{r},t')\,dt'. \quad (16)$$

Используя соотношения (6), (13) и (16), после усреднения $\mathbf{E}_m(\mathbf{r},t)\delta\mathbf{j}(\mathbf{r},t)$ по интервалу времени от $t$ до $t+2\pi/\omega$ находим джоулево тепло, поглощаемое электронами проводимости в единице объема в единицу времени:

$$Q(z,t) \approx \frac{c\nu(z,t)\omega_p^2}{\omega^4|\varepsilon(\omega)|^2}I_0\left(t - \frac{x\sin\theta}{c}\right) \times \\ \times \left[\left|\frac{\partial F(z,\omega)}{\partial z}\right|^2 + \frac{\omega^2\sin^2\theta}{c^2}|F(z,\omega)|^2\right]. \quad (17)$$

При получении выражения (17) принято, что изменением частоты столкновений $\nu(z,t)$ за время порядка $2\pi/\omega$ можно пренебречь. Кроме того, использованы неравенства $\omega t_p \gg 1$ и $\nu t_p \gg 1$. Последнее из них позволяет не учитывать поправку к $Q(z,t)$, пропорциональную $\partial I_0(t)/\partial t$.

## 4. МОДЕЛЬ НАГРЕВА ПЛЕНКИ МЕТАЛЛА

При поглощении излучения в металле происходит нагрев электронов и решетки. В основу описания эволюции температур положим уравнения двухтемпературной модели [23, 24] для температур электронов $T(z,t)$

$$C_e(z,t)\frac{\partial}{\partial t}T(z,t) = Q(z,t) + \frac{\partial}{\partial z}\left[\lambda(z,t)\frac{\partial}{\partial z}T(z,t)\right] - G(z,t)\left[T(z,t) - T_{lat}(z,t)\right] \quad (18)$$

и решетки $T_{lat}(z,t)$

$$C_{lat}\frac{\partial}{\partial t}T_{lat}(z,t) = G(z,t)\left[T(z,t) - T_{lat}(z,t)\right], \quad (19)$$

где функция $Q(z,t)$ описывается выражением (17), $C_e(z,t)$ — теплоемкость электронов, $\lambda(z,t)$ — коэффициент теплопроводности, $G(z,t)$ — параметр, описывающий передачу энергии от электронов к решетке, $C_{lat} \approx 3\varkappa N_a$ — теплоемкость решетки, $\varkappa$ — постоянная Больцмана, $N_a$ — плотность атомов решетки.

В описанных выше условиях функция $Q(z,t)$ (17) пропорциональна частоте столкновений электронов $\nu(z,t)$. В чистых металлах при $\varkappa T(z,t) \ll \epsilon_F$, где $\epsilon_F$ — энергия Ферми, и при температурах решетки больших температуры Дебая, но меньших температуры плавления, для $\nu(z,t)$ возможна аппроксимация [17, 25]

$$\nu(z,t) = \nu_{ep}\frac{T_{lat}(z,t)}{T_0} + a\frac{\varkappa^2 T(z,t)^2}{\hbar\epsilon_F} \times \left\{1 + \left[\frac{\hbar\omega}{2\pi\varkappa T(z,t)}\right]^2\right\}, \quad (20)$$

где $\nu_{ep}$ — частота столкновений электронов с фононами при комнатной температуре $T_0$, $\hbar$ — постоянная Планка, $a$ — численный коэффициент, величина которого зависит от вида зонной структуры металла. Теплоемкость электронов $C_e(z,t)$ зависит от температуры. В частности, для алюминия при $T(z,t) \lesssim 2$ эВ пригодна аппроксимация [12, 26]

$$C_e(z,t) = C_{\rm Al}T(z,t), \quad (21)$$

где $C_{\rm Al} \approx 9.1 \cdot 10^2$ эрг$\cdot$ см$^{-3}\cdot$К$^{-2}$. Для $G(z,t)$, в соответствии с данными работы [26], для алюминия можно использовать зависимость вида [12]

$$G(z,t) = G_{\rm Al}\left\{1 - \frac{0.0009}{[10^{-4}T(z,t)]^4 + 0.0030} + 0.0028\left[10^{-4}T(z,t)\right]\right\}, \quad (22)$$

где $G_{\rm Al} = 3.5\cdot 10^8$эрг$\cdot$с$^{-1}\cdot$К$^{-1}\cdot$ см$^{-3}$. В формулах (21) и (22) температура измеряется в градусах Кельвина. В уравнении (18) коэффициент теплопроводности $\lambda(z,t)$ связан с теплоемкостью соотношением

$$\lambda(z,t) = \frac{v_F^2}{3\nu_\lambda(z,t)}C_e(z,t). \quad (23)$$

Входящая в формулу (23) частота $\nu_\lambda(z,t)$ отличается от $\nu(z,t)$ и имеет вид

$$\nu_\lambda(z,t) = \nu_{ep\lambda}\frac{T_{lat}(z,t)}{T_0} + b\frac{\varkappa^2 T^2(z,t)}{\hbar\epsilon_F}, \quad (24)$$

где $\nu_{ep\lambda} \neq \nu_{ep}$ — частота столкновений электронов с фононами при $T_{lat}(z,t) = T_0$, $b \neq a$ — численный коэффициент. Отметим, что частоты столкновений (20), (24) учитывают и процессы переброса.

Уравнения (18) и (19) следует дополнить начальными и граничными условиями. Далее ограничимся рассмотрением воздействия на пленку импульсов с небольшой плотностью потока излучения, когда вклад в тепловой поток, возникающий вследствие термоэмиссии электронов, мал (см., например, [27]) и при написании граничных условий для уравнения (18) им можно пренебречь. В этих условиях для плотности теплового потока на границах пленки приближенно имеем

$$\lambda(z,t)\frac{\partial}{\partial z}T(z,t)\Big|_{z=0} = -\lambda(z,t)\frac{\partial}{\partial z}T(z,t)\Big|_{z=L} \approx 0. \quad (25)$$

Полагая, что до воздействия лазерного импульса температуры электронов и решетки одинаковы и однородны по толщине пленки, для уравнений (18), (19) имеем начальные условия вида

$$T(z, t\to -\infty) = T_{lat}(z, t\to -\infty) = T_0. \quad (26)$$

Уравнения (18), (19) с граничными (25) и начальными (26) условиями позволяют описать эволюцию температур электронов и решетки, что необходимо для понимания экспериментальных данных по поглощению излучения и термоэмиссии электронов.

## 5. ОТРАЖЕНИЕ ПРОБНОГО ИМПУЛЬСА

В разд. 2 приведены результаты измерения коэффициента отражения слабого пробного импульса, падающего вдоль нормали к поверхности пленки. Из данных эксперимента определялся интегральный коэффициент отражения, величина которого зависит от времени $\Delta t$ задержки пробного импульса относительно основного греющего импульса. Таким образом, определялась величина

$$|R(\omega,\Delta t)|^2 = \int\limits_{-\infty}^{\infty} dt |R(\omega,t)|^2 I_p(t-\Delta t) \times \times \left[\int\limits_{-\infty}^{\infty} dt\, I_p(t)\right]^{-1}, \quad (27)$$

где $I_p(t)$ — плотность потока излучения в пробном импульсе, $I_p(t) = I_p \exp[-t^2/t_p^2]$, $\tau_p = 2\sqrt{\ln 2}t_p$ — длительность пробного импульса. Входящий в (27) коэффициент отражения в момент времени $t$ в условиях слабого нагрева пленки найдем из соотношения

$$|R(\omega,t)|^2 = 1 - A(\omega,t) - \sqrt{\varepsilon_s}|T(\omega)|^2, \quad (28)$$

в котором коэффициент поглощения

$$A(\omega,t) = \frac{1}{I(t)} \int\limits_0^L [Q(z,t) + Q_0(z,t)]\Big|_{\theta=0} dz = = \frac{c}{\omega|\varepsilon(\omega)|^2} \int\limits_0^L \left[Im\,\varepsilon_0(\omega) + \frac{\nu(z,t)}{\omega^3}\omega_p^2\right] \times \times \left|\frac{\partial F(z,\omega)}{\partial z}\right|^2 dz, \quad (29)$$

и коэффициент прохождения $|T(\omega)|^2$ (10) отвечают значению угла падения $\theta = 0$. Согласно формулам (10) и (27)–(29) от $\Delta t$ зависит только вклад в $|R(\omega,\Delta t)|^2$, пропорциональный частоте столкновений электронов $\nu(z,t)$, которая изменяется в процессе нагрева электронов и решетки при поглощении импульса накачки. Поэтому для интерпретации установленной экспериментально зависимости $|R(\omega,\Delta t)|^2$ от $\Delta t$ необходимо решить уравнения (18), (19), рассчитать $\nu(z,t)$, а затем и изменение $|R(\omega,\Delta t)|^2$, обусловленное нагревом пленки. В формулах (28), (29) есть два вклада, которые не зависят от $\nu(z,t)$. Первый вклад пропорционален $Im\,\varepsilon_0(\omega)$ и описывает поглощение пробного импульса связанными электронами и решеткой. Для пленки алюминия толщиной $L = 30$ нм на основной частоте пробного импульса $\omega = 4.7 \cdot 10^{15}$ с$^{-1}$ этот вклад составляет приблизительно 0.07. Такой результат дает первое слагаемое в формуле (29), если учесть, что $\varepsilon_s \approx 1.5$, плазменная частота алюминия $\omega_p = 1.91 \cdot 10^{16}$ с$^{-1}$ [28] и $\varepsilon_0(\omega) \approx 3.77+1.73i$ [28, 29] при $\omega = 4.7\cdot 10^{15}$ с$^{-1}$. Второй вклад обусловлен частичным пропусканием излучения пленкой. Согласно формуле (10) его величина на частоте пробного импульса составляет $\sqrt{\varepsilon_s}|T(\omega)|^2 \approx 0.03$.

Теперь о вкладе в поглощение из-за столкновений электронов проводимости. При комнатной температуре в рассматриваемом диапазоне частот для $\nu$ (20) возможна аппроксимация

$$\nu \approx \nu_{ep} + a\hbar\omega^2/4\pi^2\epsilon_F.$$

В алюминии $\nu_{ep} = 9.4 \cdot 10^{13}$ с$^{-1}$, $\epsilon_F = 11.7$ эВ [28]. Полагая $a \approx 1.5$, имеем $\nu \approx 1.1 \cdot 10^{14}$ с$^{-1}$. Эта оценка не учитывает столкновения электронов с границами пленки. Если пленка шероховатая, то эффективная частота столкновений электронов проводимости возрастает, но не более чем на $v_F/L \approx 0.7 \cdot 10^{14}$ с$^{-1}$. Учет столкновений с границами увеличивает $\nu$ до $1.8 \cdot 10^{14}$ с$^{-1}$. Для такой частоты, согласно (29), вклад в $A(t)$ или $|R(\omega,t)|^2$ составляет примерно 0.02. В обсуждаемых условиях сумма трех упомянутых вкладов приблизительно равна 0.12, что примерно на 0.1 меньше, чем отличие $|R(\omega,t)|^2$ от единицы, измеренное экспериментально при малой плотности энергии в греющем импульсе (см. рис. 3), когда нет нагрева пленки. Обычно полагают, что указанное отличие является следствием зернистой структуры пленки алюминия. В связи с этим при обработке данных эксперимента не рассматривались абсолютные значения $|R(\omega,\Delta t)|^2$, а изучались лишь изменения $|R(\omega,\Delta t)|^2$ в предположении, что причиной этих изменений является нагрев пленки. При численном решении уравнений (18), (19) считалось, что

$$I_0(t) = I_0 \exp[-4(\ln 2)t^2/\tau^2]$$

и использовались следующие значения для параметров греющего импульса: $\tau = 100$ фс, $\omega = 2.35 \cdot 10^{15}$ с$^{-1}$, $\theta = \pi/4$. Также использовались приведенные выше функции $C_e(z,t)$ (21), $G(z,t)$ (22) и значения $\nu_{ep}$, $\epsilon_F$, $\omega_p$, $L$ и считалось, что $\nu_{ep\lambda} = 1.62 \cdot 10^{14}$ с$^{-1}$ [30], $v_F = 2.05 \cdot 10^8$ см/с, $T_0 = 300$ К, $N_a = 6 \cdot 10^{22}$ см$^{-3}$. Параметр $b$ (см. (24)) принят равным 2 [31]. Однако в рамках достигнутой точности измерений выявить влияние небольших изменений $b$ на $|R(\omega,\Delta t)|^2$ нельзя. Напротив, расчеты изменений $|R(\omega,\Delta t)|^2$ чувствительны к величине параметра $a$. Именно посредством изменения $a$ достигалось основное согласие теоретических расчетов и экспериментальных данных.

На рис. 5 представлены результаты численного решения уравнений для температур, полученные при двух значениях плотности потока энергии: $I_0 = 7.5 \cdot 10^{12}$ Вт/см$^2$, $10^{13}$ Вт/см$^2$. Температура электронов сначала возрастает, достигает максимума, а

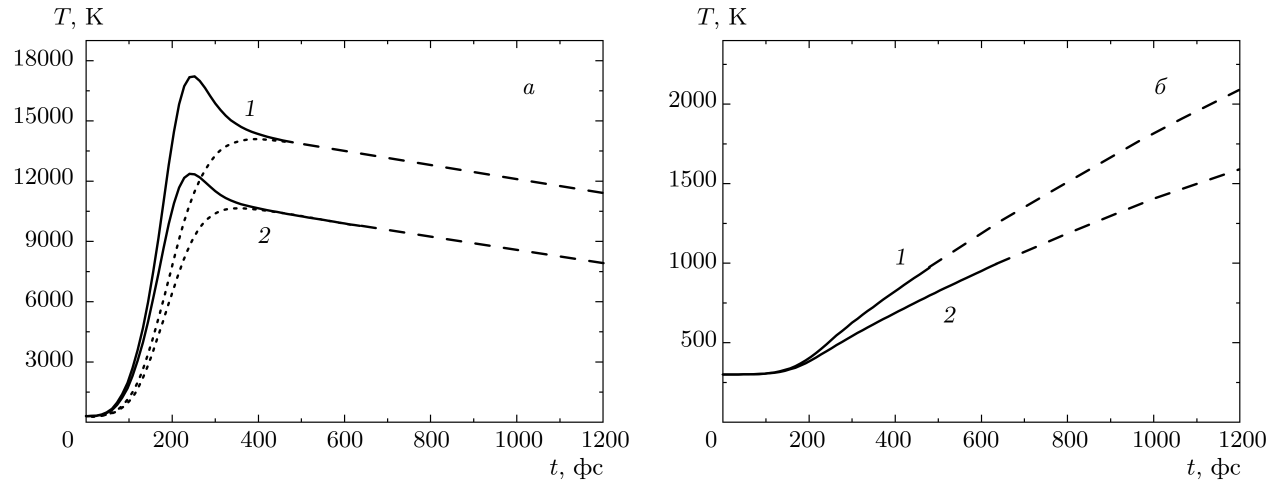


**Рис. 5.** *a*) Изменение во времени температуры электронов на передней (сплошная кривая) и задней (пунктирная кривая) поверхностях пленки при поглощении импульса с плотностью потока $I_0 = 10^{13}$ Вт/см$^2$ (кривые *1*) и $I_0 = 7.5 \cdot 10^{12}$ Вт/см$^2$ (кривые *2*). Штрихами представлены участки кривых, где разрушается решетка. *б*) Изменение во времени температуры решетки на передней поверхности пленки. Обозначения те же, что и на рис. 5*a*

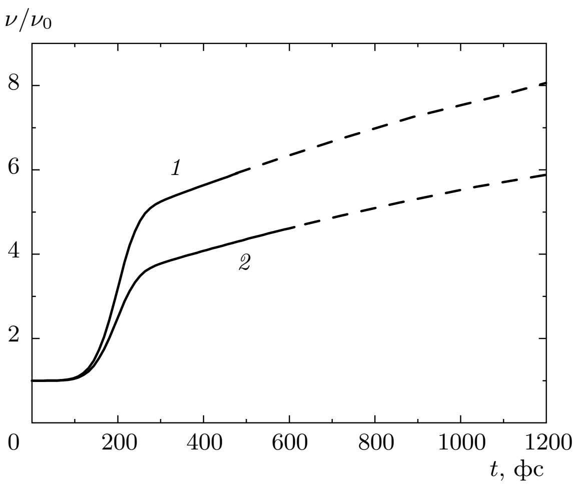


**Рис. 6.** Зависимости от времени средней по скин-слою частоты столкновений электронов: $I_0 = 10^{13}$ Вт/см$^2$ (*1*), $7.5 \cdot 10^{12}$ Вт/см$^2$ (*2*)

затем монотонно убывает. На временах, меньших 400–500 фс, температура на освещенной поверхности пленки больше, чем на ее темной поверхности. На больших временах из-за влияния теплопроводности происходит выравнивание температуры по толщине пленки, и сплошные и пунктирные кривые на рис. 5*a* сливаются. Штрихами на рис. 5 обозначены участки кривых, где температура решетки на освещенной поверхности выше температуры плавления алюминия, равной 933 К.

Эволюция температур во времени сопровождается изменением частоты столкновений электронов (20). При этом даже в те моменты времени, когда температура электронов убывает, частота столкновений возрастает из-за эффективного нагрева решетки. Монотонное увеличение частоты столкновений со временем иллюстрирует рис. 6.

Экспериментальные данные измерения коэффициента отражения и результаты расчетов $|R(\omega, \Delta t)|^2$ приведены на рис. 7. Наилучшее согласие теории с экспериментом достигнуто при $a = 1.5$, что на 20 % меньше значения $a$, установленного ранее в [12] при обработке эксперимента [32], и близко к оценкам работ [31, 33]. Относительно резкое изменение $|R(\omega, \Delta t)|^2$ в диапазоне $100 < \Delta t < 200$ фс связано с более быстрым нагревом электронов. Дальнейшее медленное изменение $|R(\omega, \Delta t)|^2$ происходит в условиях плавного увеличения частоты столкновений электронов (см. рис. 6). Расхождение между данными эксперимента и результатами расчетов на больших временах связано, по-видимому, с плавлением алюминия.

## 6. ТЕРМОЭМИССИЯ

Известно, что при относительно большой плотности потока излучения в фемтосекундном лазерном импульсе [24] термоэмиссия является основным механизмом выхода электронов из металла. При рассмотрении термоэмиссии часто используют закон

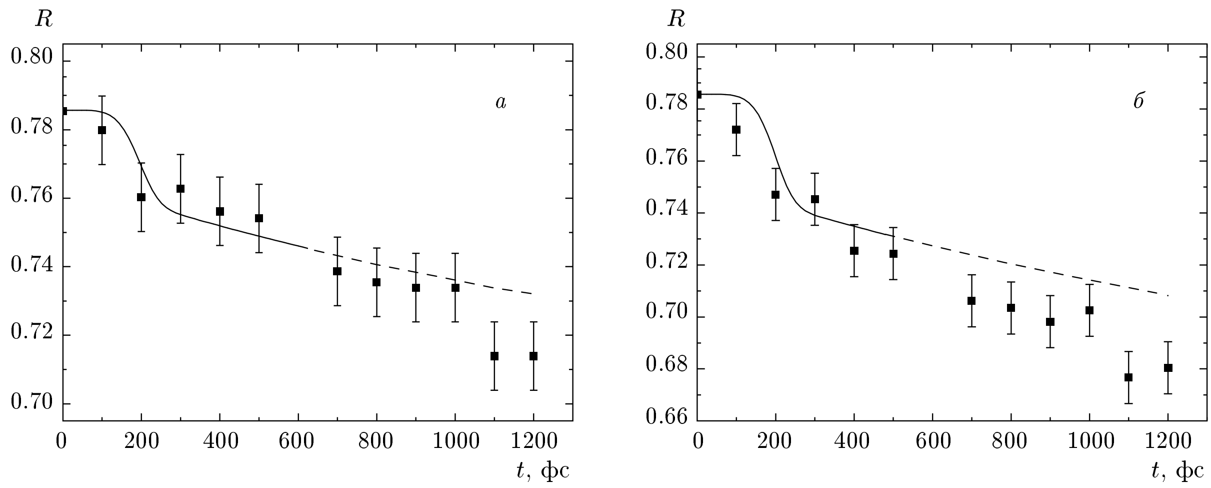


**Рис. 7.** Эволюция во времени коэффициента отражения при воздействии греющего импульса с $I_0 = 7.5 \cdot 10^{12}$ Вт/см$^2$ ($a$), $10^{13}$ Вт/см$^2$ ($б$). Квадраты с погрешностями — данные эксперимента. Кривые — результаты расчетов по формуле (27). Штрихами обозначены участки, где начинается плавление алюминия

Ричардсона–Дешмана, полученный в приближении однородной и не изменяющейся во времени температуры электронов [34, 35]. При использовании формулы Ричардсона–Дешмана полагают, что под температурой электронов можно понимать ее текущее значение на поверхности металла [6, 36, 37]. При этом основная эмиссия происходит в течение ограниченного интервала времени, когда температура электронов близка к максимальной. Не все вышедшие из металла электроны достигают детектора. Из-за формирования объемного приповерхностного заряда часть более медленных электронов сравнительно долго остается локализованной у поверхности и препятствует термоэмиссии. Согласно работе [36] при воздействии сфокусированного фемтосекундного лазерного импульса количество электронов $N_{esc}$, преодолевающих поле объемного заряда, определяется формулой

$$N_{esc} = \frac{\varkappa T_{max}}{ge^2} R_f \ln\left\{1 + \frac{ge^2}{2\pi\hbar^3} m\tau_m R_f \varkappa T_{max} \times \right.$$
$$\left. \times \exp\left[-\frac{\epsilon_F - \mu(T_{max}) + e\phi}{\varkappa T_{max}}\right]\right\}, \quad (30)$$

где $R_f$ — радиус фокального пятна, $g$ — геометрический фактор порядка единицы, определяемый формой электронного облака у поверхности, $\mu$ — химический потенциал, $e\phi$ — работа выхода, $\tau_m$ — время, в течение которого температура электронов близка к максимальной, равной $T_{max}$. При достаточно больших величинах $N_{esc}$ их число приближенно пропорционально линейному размеру фокального пятна и максимальному значению температуры электронов на поверхности.

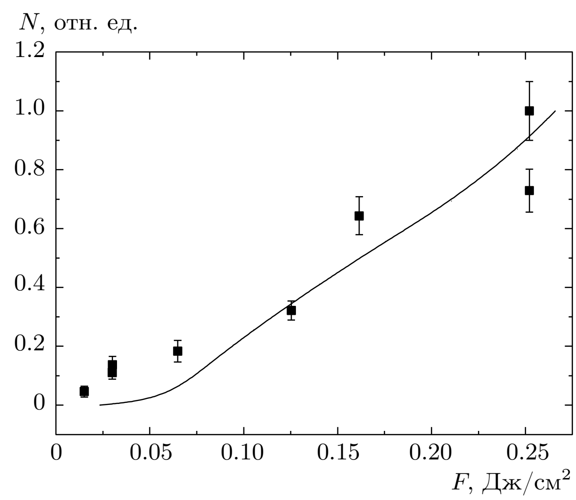


**Рис. 8.** Количество электронов эмиссии в зависимости от плотности энергии в импульсе. Квадраты с погрешностями — данные эксперимента

На рис. 8 квадратами с погрешностями представлены результаты экспериментального измерения напряжения на входном сопротивлении осциллографа, полученные при облучении алюминия импульсом длительностью 100 фс с несущей частотой излучения $\omega = 4.7 \cdot 10^{15}$ с$^{-1}$ в зависимости от плотности энергии в импульсе. Сплошная кривая соответствует числу электронов термоэмиссии, вычисленному по формуле (30), где температура находилась путем решения уравнений (18), (19). Экспериментальные значения напряжения нормированы на свое максимальное значение при плотности энергии 0.25 Дж/см$^2$, а расчетные значения количества электронов — на расчетное значение при плотности энергии 0.25 Дж/см$^2$, так как формула (30) выполняется тем лучше, чем выше температура электронов. При вычислениях принято, что работа выхода $e\phi = 4.1$ эВ [36], $\epsilon_F \approx \mu(T_{max})$ [26], радиус фокального пятна $R_f = 0.063$ см, время $\tau_m$ близко к длительности импульса $\tau = 100$ фс (см. рис. 5*a*), а облако эмитированных электронов имеет форму тонкого диска, когда $g \approx 1.7$. Из рис. 8 видно, что при относительно больших температурах имеет место неплохое согласие теории с экспериментом. При малых плотностях потока излучения наблюдается превышение экспериментального тока эмиссии над расчетным, что, по-видимому, обусловлено возрастанием вклада в ток из-за фотоэмиссии.

## 7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе представлены результаты экспериментального исследования отражения пробных фемтосекундных импульсов пленкой алюминия, нагреваемой более мощным фемтосекундным импульсом. Показано, что обнаруженное в эксперименте уменьшение интегрального коэффициента отражения в основном связано с быстрым нагревом электронов, приводящим к росту их эффективной частоты столкновений. При рассмотренных плотностях потока лазерного излучения нагрев решетки сопровождается меньшим изменением коэффициента отражения и не приводит к разрушению пленки. При последовательном решении уравнений поля в неоднородно нагреваемой пленке и уравнений для температур электронов и решетки получено приемлемое согласие результатов теоретических расчетов коэффициента отражения с данными эксперимента. На той же установке и при тех же образцах измерены потоки электронов эмиссии, возникающие при воздействии фемтосекундного импульса на пленку. Использованный в работе подход к описанию нагрева электронов в неоднородной пленке, дополненный современными представлениями о термоэмиссии электронов, позволил описать обнаруженные в эксперименте зависимости количества эмитированных электронов от плотности потока излучения.

Работа выполнена при поддержке программы Президиума РАН №24 и РФФИ (гранты №№13-02-01377, 13-02-00971, 14-02-00460).

## ЛИТЕРАТУРА


1. P. P. Pronko, S. K. Dutta, J. Squier et. al., Opt. Comm. **114**, 106 (1995).
2. F. Korte, J. Serbin, J. Koch et al., Appl. Phys. A **77**, 229 (2003).
3. F. Korte, J. Koch, and B. N. Chichkov, Appl. Phys. A **79**, 879 (2004).
4. Y. Nakata, N. Miyanaga, and T. Okada, Appl. Surf. Sci. **253**, 6555 (2007).
5. Ю. Н. Кульчин, О. Б. Витрик, А. А. Кучмижак и др., ЖЭТФ **146**, 21 (2014).
6. X. Y. Wang and M. C. Downer, Opt. Lett. **17**, 1450 (1992).
7. С. И. Кудряшов, В. И. Емельянов, Письма в ЖЭТФ **73**, 751 (2001).
8. C. Guo and A. J. Taylor, Phys. Rev. B **62**, R11921 (2000).
9. C. Guo, G. Rodrigues, and A. J. Taylor, Phys. Rev. Lett. **86**, 1638 (2001).
10. В. А. Исаков, А. П. Канавин, С. А. Урюпин, КЭ **36**, 928 (2006).
11. S. G. Bezhanov, A. P. Kanavin, and S. A. Uryupin, J. Rus. Laser Res. **31**, 554 (2010).
12. С. Г. Бежанов, А. П. Канавин, С. А. Урюпин, Опт. и спектр. **114**, 422 (2013).
13. X. Y. Wang, D. M. Riffe, Y. S. Lee et al., Phys. Rev. B **50**, 8016 (1994).
14. W. Wendelen, D. Autrique, and A. Bogaerts, Appl. Phys. Lett. **96**, 051121 (2010).
15. С. Г. Бежанов, А. П. Канавин, С. А. Урюпин, КЭ **42**, 447 (2012).
16. M. Bonn, D. N. Denzler, S. Funk et al., Phys. Rev. B **61**, 1101 (2000).
17. С. Г. Бежанов, А. П. Канавин, С. А. Урюпин, КЭ **44**, 859 (2014).
18. S. G. Bezhanov, A. P. Kanavin, and S. A. Uryupin, Phys. Lett. A **378**, 975 (2014).
19. A. Couairon and A. Mysyrowicz, Phys. Rep. **441**, 47 (2007).
20. E. D. Palik (ed.), *Handbook of Optical Constants of Solids*, Acad. Press, Orlando (1998).
21. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, С. В. Макаров и др., Письма в ЖЭТФ **96**, 413 (2012).

**22**. L. Bruschi, M. Santini, and G. Torzo, J. Phys. B: Atom. Mol. Phys. **17**, 1137 (1984).

**23**. М. И. Каганов, И. М. Лифшиц, Л. В. Танатаров, Атомная энергия **6**, 391 (1959).

**24**. С. И. Анисимов, Б. Л. Капелиович, Т. Л. Перельман, ЖЭТФ **66**, 776 (1974).

**25**. Р. Н. Гуржи, ЖЭТФ **35**, 965 (1958).

**26**. Zh. Lin, L. V. Zhigilei, and V. Celli, Phys. Rev. B **77**, 075113 (2008).

**27**. T. Balasubramni, S. H. Kim, and S. H. Jeong, Appl. Surf. Sci. **255**, 9601 (2009).

**28**. D. Y. Smith and B. Segall, Phys. Rev. B **34**, 5191 (1986).

**29**. A. D. Rakić, Appl. Opt. **34**, 4755 (1995).

**30**. *Физическая энциклопедия*, под ред. А. М. Прохорова, Советская энциклопедия, Москва (1990).

**31**. Н. А. Иногамов, Ю. В. Петров, ЖЭТФ **137**, 509 (2010).

**32**. H. M. Milchberg, R. M. Freeman, S. C. Davey et al., Phys. Rev. Lett. **61**, 2364 (1988).

**33**. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, S. I. Ashitkov et al., Appl. Surf. Sci. **255**, 9712 (2009).

**34**. O. W. Richardson, Phil. Mag. **23**, 594 (1912).

**35**. S. Dushman, Phys. Rev. **21**, 623 (1923).

**36**. D. M. Riffe, X. Y. Wang, M. C. Downer et al., J. Opt. Soc. Amer. B **10**, 1424 (1993).

**37**. G. Du, Q. Yang, F. Chen et al., Appl. Surf. Sci. **257**, 9177 (2011).