

Нагрев металлической нанопленки при поглощении фемтосекундного лазерного излучения

С.Г.Бежанов, А.П.Канавин, С.А.Урюпин

Изучена эволюция температур электронов и решетки металлической нанопленки, взаимодействующей с фемтосекундным импульсом s- или p-поляризованного излучения. Показано, что и при толщине пленки, большей глубины скин-слоя, распределение температуры во время действия импульса может быть близким к однородному вследствие большой электронной теплопроводности, приводящей к быстрому перераспределению энергии по толщине пленки.

Ключевые слова: фемтосекундный импульс, металлическая нанопленка, скин-слой, температура электронов.

1. Введение

Особенности взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов с металлическими образованиями нанометрового размера исследуются достаточно широко (см., напр., [1–5]). В видимом диапазоне частот для типичных металлов глубина скин-слоя составляет примерно 10–20 нм. Если размеры металлического образования имеют такой же порядок величины или больше, то распределение поля в нем существенно неоднородно. При поглощении такого поля реализуется неоднородный нагрев металла. При этом во время действия фемтосекундного импульса нагреваются преимущественно электроны, т.к. время передачи энергии от электронов к решетке составляет несколько пикосекунд. В массивных образцах быстрый неоднородный нагрев электронов приводит к существенному изменению их физических свойств (см., напр., [6, 7]). Аналогичные изменения имеют место и в наноразмерных объектах [8, 9], толщина которых больше глубины скин-слоя. Вместе с тем, при описании свойств таких объектов популярным является предположение об однородности температуры электронов, которое представляется естественным, если размеры объекта в несколько раз меньше глубины скин-слоя. Для образцов большего размера исчерпывающего количественного знания о точности приближения однородности температуры пока нет.

С целью установления большей ясности в этом вопросе в настоящей статье рассмотрен нагрев металлической нанопленки при поглощении фемтосекундного лазерного импульса. Дан вывод выражений для мощности, поглощаемой в пленке при воздействии на нее импульсов s- или p-поляризованного излучения. Эти выражения положены в основу количественного описания эволюции температур электронов и решетки нанопленки из золота. Показано,

как в процессе воздействия импульса происходит выравнивание температур по толщине пленки. Расчеты выполнены для импульса s- или p-поляризованного излучения, нескольких плотностей потока излучения и для пленок, толщина которых изменялась в несколько раз по сравнению с толщиной скин-слоя. Установлено, что из-за большой теплопроводности электронов в пленке из золота даже при воздействии импульсов длительностью около ста фемтосекунд приближение однородности температуры может быть приемлемым и при толщинах пленки, больших глубины скин-слоя.

2. Основные уравнения для пленки

Рассмотрим взаимодействие импульса несфокусированного электромагнитного излучения с проводящей пленкой, имеющей толщину L . Примем, что пленка однородна и занимает область пространства $0 < z < L$. Направление распространения воздействующего излучения задается вектором $\mathbf{n} = (\sin\theta, 0, \cos\theta)$, где θ – угол между \mathbf{n} и осью z , ортогональной поверхности пленки. Геометрия взаимодействия импульса с пленкой показана на рис. 1. При воз-

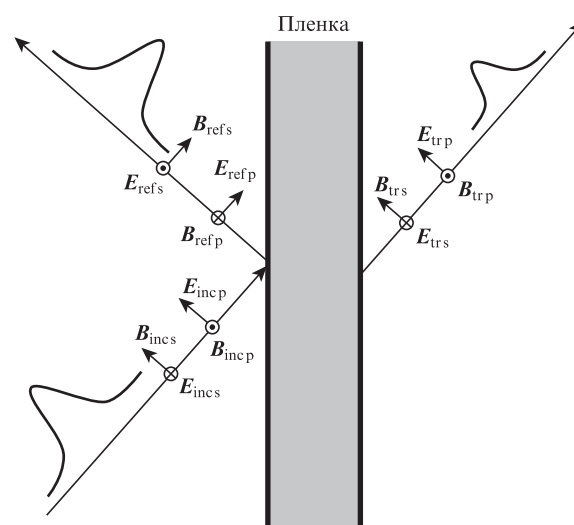


Рис.1. Схема взаимодействия лазерного импульса с проводящей пленкой.

С.Г.Бежанов, С.А.Урюпин. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31; e-mail: uryupin@sci.lebedev.ru
А.П.Канавин. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53

Поступила в редакцию 12 декабря 2013 г., после доработки – 13 марта 2014 г.

действии такого излучения в пленке возникает поле, не зависящее от координаты y . Поскольку пленка однородна, то при описании воздействия сравнительно слабого излучения можно воспользоваться преобразованием Фурье по координате x и времени t . Тогда из уравнений Максвелла для фурье-образов электрического ($\mathbf{E}(q, z, \Omega)$) и магнитного ($\mathbf{B}(q, z, \Omega)$) полей имеем

$$-e_x \frac{\partial}{\partial z} E_y(q, z, \Omega) - e_y \left[i q E_z(q, z, \Omega) - \frac{\partial}{\partial z} E_x(q, z, \Omega) \right] + e_z i q E_y(q, z, \Omega) = \frac{i \Omega}{c} \mathbf{B}(q, z, \Omega), \quad (1)$$

$$-e_x \frac{\partial}{\partial z} B_y(q, z, \Omega) - e_y \left[i q B_z(q, z, \Omega) - \frac{\partial}{\partial z} B_x(q, z, \Omega) \right] + e_z i q B_y(q, z, \Omega) = -\frac{i \Omega}{c} \varepsilon_0(\Omega) \mathbf{E}(q, z, \Omega) + \frac{4\pi}{c} \mathbf{j}(q, z, \Omega), \quad (2)$$

где e_x, e_y, e_z – единичные векторы; c – скорость света; Ω – частота; q – волновое число вдоль оси x ; $\varepsilon_0(\Omega)$ – вклад в диэлектрическую проницаемость от связанных электронов и решетки. Фурье-компонента плотности тока $\mathbf{j}(q, z, \Omega)$ находится из уравнения

$$[v(\Omega) - i\Omega] \mathbf{j}(q, z, \Omega) = \frac{\omega_p^2}{4\pi} \mathbf{E}(q, z, \Omega), \quad (3)$$

где ω_p – плазменная частота; $v(\Omega)$ – эффективная частота столкновений электронов в поле, имеющем частоту Ω . Введение эффективной частоты $v(\Omega)$ возможно, если свойства пленки не изменяются за время $\sim 1/\Omega$. Использование простейшего материального уравнения вида (3) оправдано для слабого поля и при условии, что характерный пространственный масштаб изменения поля больше, чем $v_F/|v(\Omega) - i\Omega|$, где v_F – скорость Ферми.

Как обычно, рассмотрим уравнения (1) и (2) при воздействии на пленку s- или p-поляризованного излучения (рис.1). Для s-поляризованного излучения фурье-образы электрического и магнитного полей имеют вид $\mathbf{E}(q, z, \Omega) = (0, E_y(q, z, \Omega), 0)$, $\mathbf{B}(q, z, \Omega) = (B_x(q, z, \Omega), 0, B_z(q, z, \Omega))$. При этом для $E(q, z, \Omega) \equiv E_y(q, z, \Omega)$ из (1)–(3) получаем уравнение

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} E(q, z, \Omega) + \left[\frac{\Omega^2}{c^2} \varepsilon(\Omega) - q^2 \right] E(q, z, \Omega) = 0, \quad 0 < z < L, \quad (4)$$

где $\varepsilon(\Omega) = \varepsilon_0(\Omega) - \omega_p^2 / \{\Omega[\Omega + i v(\Omega)]\} = \varepsilon'(\Omega) + i\varepsilon''(\Omega)$ – диэлектрическая проницаемость пленки.

Для p-поляризованного излучения $\mathbf{E}(q, z, \Omega) = (E_x(q, z, \Omega), 0, E_z(q, z, \Omega))$ и $\mathbf{B}(q, z, \Omega) = (0, B_y(q, z, \Omega), 0)$. В этом случае уравнение вида (4) имеет место для функции $B(q, z, \Omega) \equiv B_y(q, z, \Omega)$:

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} B(q, z, \Omega) + \left[\frac{\Omega^2}{c^2} \varepsilon(\Omega) - q^2 \right] B(q, z, \Omega) = 0, \quad 0 < z < L. \quad (5)$$

Уравнения (4) и (5) составляют основу для рассмотрения оптических свойств однородной пленки, взаимодействующей с импульсом несфокусированного электромагнитного излучения.

3. Воздействие s-поляризованного излучения

В этом разделе рассмотрим воздействие на пленку импульса s-поляризованного излучения с несущей частотой ω и огибающей $\mathbf{E}_{\text{en}}(t) = (0, E_{\text{en}}(t), 0)$, слабо изменяющейся за время $\sim 1/\omega$. Ортогональные плоскости падения электрическое поле импульса представим в виде

$$E_L(t - \mathbf{k}r/\omega) = E_{\text{en}}(t - \mathbf{k}r/\omega) \sin(\omega t - \mathbf{k}r), \quad (6)$$

где волновой вектор $\mathbf{k} = n\omega/c = (\omega/c)(\sin\theta, 0, \cos\theta)$. Поле (6) отвечает плоской монохроматической волне, бегущей в направлении вектора \mathbf{n} . Фурье-образ такой волны описывается выражением

$$E_{\text{inc}}(q, z, \Omega) = E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega) \exp\left(i \frac{\Omega}{c} z \cos\theta\right), \quad z < 0,$$

$$E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega) = 2\pi E_L(\Omega) \delta\left(q - \frac{\Omega}{c} \sin\theta\right), \quad (7)$$

$$E_L(\Omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E_L(t) \exp(i\Omega t) dt.$$

Согласно (7) для несфокусированного излучения $q = (\Omega/c) \sin\theta$. Поскольку уравнения (1)–(4) являются линейными, то данное значение q определяет поле в пленке, а также отраженное и прошедшее поля. Учитывая этот факт и то, что уравнение (4) при $\varepsilon(\Omega) = 1$ позволяет описывать поле вне пленки, для функции $E(q, z, \Omega)$ имеем

$$E_{\text{ref}}(q, z, \Omega) = R_s E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega) \exp\left(-i \frac{\Omega}{c} z \cos\theta\right), \quad z < 0;$$

$$E(q, z, \Omega) = F_s(q, z, \Omega) E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega), \quad (8)$$

$$F_s(q, z, \Omega) = C_1 \sinh(\kappa z) + C_2 \cosh(\kappa z), \quad 0 < z < L;$$

$$E_{\text{tr}}(q, z, \Omega) = T_s E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega) \exp\left(i \frac{\Omega}{c} z \cos\theta\right), \quad z > L.$$

Здесь $R_s = R_s(\Omega)$ и $T_s = T_s(\Omega)$ – комплексные коэффициенты отражения и прохождения поля с частотой Ω ; C_1 и C_2 – неизвестные функции частоты Ω ;

$$\kappa^2 = \kappa^2(\Omega) = \frac{\Omega^2}{c^2} [\sin^2\theta - \varepsilon(\Omega)]. \quad (9)$$

Из условий непрерывности тангенциальных компонент электрического и магнитного полей, исключив неизвестные функции C_1 и C_2 , на границах пленки находим R_s, T_s и фурье-образ поля внутри металла:

$$R_s = -1 - \frac{2\Omega \cos\theta}{\mathcal{D}_s} [\Omega \cos\theta \sinh(\kappa L) + i\kappa c \cosh(\kappa L)], \quad (10)$$

$$T_s = -\frac{2\Omega \cos\theta}{\mathcal{D}_s} i\kappa c \exp\left(-i \frac{\Omega}{c} L \cos\theta\right), \quad (11)$$

$$E(q, z, \Omega) \equiv F_s(z, \Omega) E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega) = \frac{2\Omega \cos\theta}{\mathcal{D}_s} \times \{\Omega \cos\theta \sinh[\kappa(z-L)] - i\kappa c \cosh[\kappa(z-L)]\} E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega), \quad (12)$$

где использовано обозначение

$$D_s = (\kappa^2 c^2 - \Omega^2 \cos^2 \theta) \sinh(\kappa L) - 2i\Omega \kappa c \cos \theta \cosh(\kappa L). \quad (13)$$

Поскольку $\varepsilon(-\Omega) = \varepsilon^*(\Omega)$, то имеет место соотношение $F_s(z, -\Omega) = F_s^*(z, \Omega)$. Из (12), после обратного преобразования Фурье по q и Ω , для поля в пленке имеем выражение

$$E(x, z, t) = \frac{1}{2i} \int_{-\infty}^{\infty} dt' E_{\text{en}}(t') \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} \exp[-i\Omega(t-t') + i\frac{x}{c}\Omega \sin \theta] \\ \times \left\{ F_s(z, \Omega - \omega) \exp\left[i\omega\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right)\right] \right. \\ \left. - F_s(z, \Omega + \omega) \exp\left[-i\omega\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right)\right] \right\}. \quad (14)$$

Огибающая импульса $E_{\text{en}}(t)$ изменяется за время порядка длительности импульса t_p , которое много больше $1/\omega$. Для такого импульса основной вклад в интеграл по Ω дают частоты $\Omega \lesssim 1/t_p \ll \omega$. С учетом этого неравенства из (14) приближенно находим

$$E(x, z, t) \simeq \frac{1}{2i} \left\{ \exp\left[i\omega\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right)\right] F_s(z, -\omega) \right. \\ \left. - \exp\left[-i\omega\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right)\right] F_s(z, \omega) \right\} E_{\text{en}}\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right). \quad (15)$$

Используя аналогичные рассуждения и уравнение (3) для плотности тока вдоль оси y , имеем

$$j(x, z, t) \simeq \frac{\omega_p^2}{8\pi i} \left\{ \exp\left[i\omega\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right)\right] \frac{F_s(z, -\omega)}{v + i\omega} \right. \\ \left. - \exp\left[-i\omega\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right)\right] \frac{F_s(z, \omega)}{v - i\omega} \right\} E_{\text{en}}\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right), \quad (16)$$

где $v = v(\omega) = v(-\omega)$. Плотность тока (16) и поле (15) позволяют вычислить мощность $Q(x, z, t) = \langle j(x, z, t) E(x, z, t) \rangle$, поглощаемую электронами проводимости в единице объема, где угловые скобки означают усреднение по интервалу времени $2\pi/\omega$. Пренебрегая изменением огибающей за время $2\pi/\omega$, из (15), (16) находим

$$Q(x, z, t) \simeq \frac{\omega_p^2}{8\pi} E_{\text{en}}^2\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right) \frac{v}{\omega^2 + v^2} |F_s(z, \omega)|^2. \quad (17)$$

Помимо электронов проводимости вклад в плотность тока дают связанные электроны и решетка. Их вклад определяется производной по времени $\partial \mathbf{P} / \partial t$ от вектора поляризации $\mathbf{P} = (\mathbf{D} - \mathbf{E}) / 4\pi$. При этом фурье-образ данного вектора $\mathbf{P}(q, z, \Omega) = [\varepsilon_0(\Omega) - 1] \mathbf{E}(q, z, \Omega)$. Используя последнее соотношение и формулу (12), после обратного преобразования Фурье для обсуждаемого вклада в плотность тока получаем выражение

$$\frac{\partial}{\partial t} P(x, z, t) = \frac{\omega}{8\pi} \left\{ \exp\left[i\omega\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right)\right] F_s(z, -\omega) \right. \\ \times [\varepsilon_0(-\omega) - 1] + \exp\left[-i\omega\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right)\right] \\ \left. \times F_s(z, \omega) [\varepsilon_0(\omega) - 1] \right\} E_{\text{en}}\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right). \quad (18)$$

При выводе соотношения (18) опущены малые поправки $\sim (\omega t_p)^{-1} \ll 1$ и принято, что функция $\varepsilon_0(\omega)$ не имеет осо-

бенностей в интервале $\Delta\omega \sim 1/t_p$ вблизи частоты ω . Как и для электронов проводимости, из соотношений (15) и (18) находим мощность $Q_0(x, z, t)$, поглощаемую в единице объема связанными электронами и решеткой:

$$Q_0(x, z, t) \simeq \frac{\omega}{8\pi} \varepsilon_0''(\omega) |F_s(z, \omega)|^2 E_{\text{en}}^2\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right), \quad (19)$$

где учтено, что $\varepsilon_0(\omega) = \varepsilon_0'(\omega) + i\varepsilon_0''(\omega)$.

Интеграл по толщине пленки от суммы $Q(x, z, t) + Q_0(x, z, t)$ дает мощность, поглощаемую на единице площади вблизи точки с координатой x . В этой же точке плотность потока энергии падающего импульса

$$I\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right) = \frac{c}{8\pi} E_{\text{en}}^2\left(t - \frac{x}{c} \sin \theta\right).$$

Отношение интегральной поглощаемой мощности к $I[t - (x/c) \sin \theta] \cos \theta$ определяет коэффициент поглощения импульса s-поляризованного излучения однородной пленкой

$$A_s = \frac{1}{\cos \theta} \frac{\omega}{c} \left[\varepsilon_0''(\omega) + \frac{v}{\omega} \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + v^2} \right] \int_0^L dz |F_s(z, \omega)|^2. \quad (20)$$

Отметим, что это выражение в пределе $\kappa L \gg 1$ переходит в полученное нами ранее [10] соотношение для массивного образца.

4. Воздействие р-поляризованного излучения

Перейдем к рассмотрению воздействия на пленку импульса р-поляризованного излучения, когда электрическое поле лежит в плоскости падения (рис.1). Сохраняя основные обозначения из разд.3, магнитное и электрическое поля импульса представим в виде $\mathbf{B} = (0, B_L, 0)$, $\mathbf{E} = (E_L \cos \theta, 0, -E_L \sin \theta)$, где $E_L = B_L$;

$$B_L = B_L(t - \kappa r/\omega) = E_{\text{en}}(t - \kappa r/\omega) \sin(\omega t - \kappa r). \quad (21)$$

Фурье-образ функции (21) описывается формулами (7), из которых следует, что $q = (\Omega/c) \sin \theta$. Учитывая это соотношение, из уравнения (5) находим

$$B_{\text{ref}}(q, z, \Omega) = R_p E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega) \exp\left(-i\frac{\Omega}{c} z \cos \theta\right), \quad z < 0; \\ B(q, z, \Omega) = F_p(q, z, \Omega) E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega), \\ F_p(q, z, \Omega) = C_3 \sinh(kz) + C_4 \cosh(kz), \quad 0 < z < L; \\ B_{\text{tr}}(q, z, \Omega) = T_p E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega) \exp\left(i\frac{\Omega}{c} z \cos \theta\right), \quad z > L. \quad (22)$$

Из условий непрерывности тангенциальных компонент электрического и магнитного полей при $z = 0$ и $z = L$, исключив C_3 и C_4 , получаем

$$R_p = R_p(\Omega) = -1 - \frac{2}{D_p} \Omega \varepsilon(\Omega) \\ \times \cos \theta [\Omega \varepsilon(\Omega) \cos \theta \sinh(\kappa L) + i \kappa c \cosh(\kappa L)], \quad (23)$$

$$T_p = T_p(\Omega) = -\frac{2}{D_p} \Omega \varepsilon(\Omega) i \kappa c \cos \theta \exp\left(-i\frac{\Omega}{c} L \cos \theta\right), \quad (24)$$

$$\begin{aligned}
B(q, z, \Omega) &\equiv F_p(z, \Omega) E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega) \\
&= \frac{2}{\mathcal{D}_p} \Omega \varepsilon(\Omega) \cos \theta \{ \Omega \varepsilon(\Omega) \cos \theta \sinh[\kappa(z-L)] \\
&\quad - i \kappa c \cosh[\kappa(z-L)] \} E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega), \quad (25)
\end{aligned}$$

где использовано обозначение

$$\begin{aligned}
\mathcal{D}_p &= [\kappa^2 c^2 - \varepsilon^2(\Omega) \Omega^2 \cos^2 \theta] \sinh(\kappa L) \\
&\quad - 2i \kappa c \Omega \varepsilon(\Omega) \cos \theta \cosh(\kappa L). \quad (26)
\end{aligned}$$

Далее, используя уравнения (2) и (3), находим фурье-образ электрического поля в металле

$$\begin{aligned}
E(q, z, \Omega) &= -\frac{c}{\Omega \varepsilon(\Omega)} E_{\text{inc}}(q, 0, \Omega) \\
&\quad \times \left[i e_x \frac{\partial}{\partial z} F_p(z, \Omega) + e_z q F_p(z, \Omega) \right]. \quad (27)
\end{aligned}$$

Функция $E(q, z, \Omega)$ определяет фурье-образы плотности тока проводимости и частной производной по времени от вектора поляризации:

$$-i \Omega \mathbf{P}(q, z, \Omega) + \mathbf{j}(q, z, \Omega) = \frac{\Omega}{4\pi i} [\varepsilon(\Omega) - 1] E(q, z, \Omega). \quad (28)$$

Принимая во внимание соотношения (7) и неравенство $\omega t_p \gg 1$, после обратного преобразования Фурье по координате и времени из (27) находим электрическое поле в металле

$$\begin{aligned}
E(x, z, t) &= \frac{1}{2i} \left\{ \exp \left[i \omega \left(t - \frac{x}{c} \sin \theta \right) \right] \frac{1}{\varepsilon(-\omega)} \right. \\
&\quad \times \left[i e_x \frac{\partial}{\partial z} F_p(z, -\omega) \frac{c}{\omega} - e_z \sin \theta F_p(z, -\omega) \right] \\
&\quad + \exp \left[-i \omega \left(t - \frac{x}{c} \sin \theta \right) \right] \frac{1}{\varepsilon(\omega)} \left[i e_x \frac{\partial}{\partial z} F_p(z, \omega) \frac{c}{\omega} \right. \\
&\quad \left. \left. + e_z \sin \theta F_p(z, \omega) \right] \right\} E_{\text{en}} \left(t - \frac{x}{c} \sin \theta \right). \quad (29)
\end{aligned}$$

Совершенно аналогично из (27) и (28) получаем

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{P}(x, z, t) + \mathbf{j}(x, z, t) &= \frac{ic}{8\pi} \left\{ \exp \left[i \omega \left(t - \frac{x}{c} \sin \theta \right) \right] \right. \\
&\quad \times \left[1 - \frac{1}{\varepsilon(-\omega)} \right] \left[e_x \frac{\partial}{\partial z} F_p(z, -\omega) + i e_z \frac{\omega}{c} \sin \theta F_p(z, -\omega) \right] \\
&\quad - \exp \left[-i \omega \left(t - \frac{x}{c} \sin \theta \right) \right] \left[1 - \frac{1}{\varepsilon(\omega)} \right] \left[e_x \frac{\partial}{\partial z} F_p(z, \omega) - \right. \\
&\quad \left. - i e_x \frac{\omega}{c} \sin \theta F_p(z, \omega) \right] \left. \right\} E_{\text{en}} \left(t - \frac{x}{c} \sin \theta \right). \quad (30)
\end{aligned}$$

Усреднение по интервалу времени $2\pi/\omega$ произведения выражений (29) и (30) дает поглощаемую в единице объема пленки мощность

$$\begin{aligned}
Q(x, z, t) + Q_0(x, z, t) &= \frac{\varepsilon''(\omega) \omega}{|\varepsilon(\omega)|^2 c} \\
&\quad \times \left\{ \sin^2 \theta |F_p(z, \omega)|^2 + \frac{c^2}{\omega^2} \left| \frac{\partial}{\partial z} F_p(z, \omega) \right|^2 \right\} I \left(t - \frac{x}{c} \sin \theta \right). \quad (31)
\end{aligned}$$

При получении соотношения (31) использовались те же предположения, что и при получении формул (17), (19), описывающих поглощение импульса s-поляризованного излучения. Интегрируя (31) по толщине пленки, после деления на плотность потока энергии падающего импульса находим коэффициент поглощения импульса р-поляризованного излучения

$$\begin{aligned}
A_p &= \frac{1}{\cos \theta} \frac{\varepsilon''(\omega) \omega}{|\varepsilon(\omega)|^2 c} \\
&\quad \times \int_0^L dz \left\{ \sin^2 \theta |F_p(z, \omega)|^2 + \frac{c^2}{\omega^2} \left| \frac{\partial}{\partial z} F_p(z, \omega) \right|^2 \right\}. \quad (32)
\end{aligned}$$

Выражение (32) в пределе $\kappa L \gg 1$ дает коэффициент поглощения массивного образца [10].

5. Нагрев нанопленки

Нагрев пленки будем описывать уравнениями для температур электронов $T = T(z, t)$ и решетки $T_{\text{lat}} = T_{\text{lat}}(z, t)$ [11, 12]:

$$C_e \frac{\partial T}{\partial t} = Q + \frac{\partial}{\partial z} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \right) - G(T - T_{\text{lat}}), \quad (33)$$

$$C_{\text{lat}} \frac{\partial T_{\text{lat}}}{\partial t} = G(T - T_{\text{lat}}), \quad (34)$$

где C_e и C_{lat} – теплоемкости электронов и решетки; параметр G определяет скорость передачи энергии от электронов к решетке; λ – коэффициент теплопроводности. В отличие от (33), уравнение (34) не учитывает нагрев решетки из-за поглощения поля (см. формулы (19) и (31) для Q_0). В обсуждаемых далее условиях такой нагрев мал. В уравнении (33) мощность Q , выделяемая в единицу времени в единице объема пленки, вообще говоря, зависит от координаты в плоскости пленки (см. формулы (17), (31)). Ниже такой зависимостью пренебрегаем, поскольку при воздействии импульса несфокусированного излучения на однородную пленку характерный масштаб неоднородности нагрева вдоль оси x порядка $ct_p/\sin \theta$ и много больше длины волны. Для определенности при обсуждении нагрева примем, что $x = 0$. Кроме того, ограничимся рассмотрением наиболее типичных условий, когда несущая частота ω значительно превышает эффективную частоту столкновений электронов, $\omega \gg \nu$, и $\omega_p^2 \gg \omega^2 |\varepsilon_0(\omega)|$. В этих условиях $\kappa \approx \omega_p/c$ и для мощности Q из (17) и (31) приближенно имеем

$$Q_s \approx \frac{4\nu}{c} I(t) \frac{\omega_p^2 \cos^2 \theta \cosh^2[\omega_p(L-z)/c]}{4\omega^2 \cos^2 \theta \cosh^2(\omega_p L/c) + \omega_p^2 \sinh^2(\omega_p L/c)}, \quad (35)$$

$$\begin{aligned}
Q_p &\approx \frac{4\nu}{c} I(t) [4\omega^2 \cosh^2(\omega_p L/c) + \omega_p^2 \cos^2 \theta \sinh^2(\omega_p L/c)]^{-1} \\
&\quad \times \{ \omega^2 (1 + \sin^2 \theta \cos^2 \theta) \sinh^2[\omega_p(L-z)/c] \\
&\quad + (\omega_p^2 \cos^2 \theta + \omega^4/\omega_p^2) \cosh^2[\omega_p(L-z)/c] \}. \quad (36)
\end{aligned}$$

Как для s-, так и для p-поляризованного излучения поглощаемая мощность пропорциональна эффективной частоте столкновений электронов. Тогда, если температура электронов много меньше температуры вырождения, а температура решетки больше температуры Дебая, но меньше температуры плавления, для v возможна следующая аппроксимация [7, 13]:

$$v = v_{ep} \frac{T_{lat}}{T_0} + a \frac{\kappa^2 T^2}{\hbar \varepsilon_F} \left[1 + \left(\frac{\hbar \omega}{2\pi \kappa T} \right)^2 \right], \quad (37)$$

где v_{ep} – частота столкновений электронов с фононами при комнатной температуре T_0 ; \hbar – постоянная Планка; ε_F – энергия Ферми; κ – постоянная Больцмана; a – численный коэффициент порядка единицы. Формулы (35) и (36) получены для однородной пленки. Однако если $v \ll \omega$, их можно использовать и в том случае, когда $v = v(z, t)$ зависит от координаты и слабо изменяется за время $\sim 1/\omega$. При $\omega \gg v$ пропорциональный $v(z, t)$ вклад в диэлектрическую проницаемость можно рассматривать как поправку к большой однородной части, если $|\varepsilon_0(\omega) - \omega_p^2/\omega^2| \gg \omega_p^2 v(z, t)/\omega^3$. В этих условиях при описании поля в металле влияние $v(z, t)$ учитывается в рамках теории возмущений (подробнее см. в [6, 7]). В нулевом приближении считается, что диэлектрическая проницаемость не зависит от $v(z, t)$, а в следующих приближениях находятся содержащие различные степени $v(z, t)$ поправки к полю. В [6, 7] показано, что в линейном по $v(z, t)$ приближении поглощаемая мощность описывается выражениями, подобными (35), (36), но с частотой столкновений $v(z, t)$, зависящей от координаты и времени. При этом обусловленное нагревом электронов проводимости и решетки изменение $v(z, t)$ за время $\sim 1/\omega$ считается несущественным. При использовании такого приближенного рассмотрения пренебрегается изменением $\varepsilon_0(\omega)$ за время $\sim 1/\omega$ из-за нагрева решетки. Именно такие условия, в которых нагрев металла приводит к несущественным изменениям $\varepsilon_0(\omega)$ и $v(z, t)$ за время $\sim 1/\omega$, обсуждаются ниже при изучении неоднородного нагрева пленки. Неоднородность нагрева учитывают также теплоемкость C_e , параметр G и коэффициент теплопроводности

$$\lambda = \frac{v_F^2}{3v_\lambda} C_e, \quad v_\lambda = v_{ep\lambda} \frac{T_{lat}}{T_0} + b \frac{\kappa^2 T^2}{\hbar \varepsilon_F}. \quad (38)$$

Выражение для частоты v_λ , в отличие от выражения для v , не зависит от ω и содержит другие параметры: $v_{ep\lambda} \neq v_{ep}$ и $b \neq a$.

Интересуясь нагревом пленки, будем считать, что до воздействия лазерного импульса $T = T_{lat} = T_0$. Кроме того, уравнение (33) дополним граничными условиями, соответствующими отсутствию теплового потока на поверхностях пленки:

$$\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{z=0} = -\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{z=L} \simeq 0. \quad (39)$$

При этом, как и в [14], вклад в тепловой поток, обусловленный термоэмиссией электронов, считается сравнительно малым.

Остановимся подробнее на количественном описании нагрева пленки из золота, взаимодействующей с гауссовым импульсом s- или p-поляризованного излучения, для которого

$$I(t) = I_0 \exp(-t^2/t_p^2), \quad (40)$$

где I_0 – максимальная плотность потока, а t_p определяет длительность импульса по полувысоте $\tau = 2t_p \sqrt{\ln 2}$. В численных расчетах используем следующие значения для параметров пленки из золота: $T_0 = 300$ К, $\varepsilon_F = 5.5$ эВ, $v_F = 1.4 \times 10^8$ см/с, $\omega_p = 1.37 \times 10^{16}$ с⁻¹, $v_{ep} = 1.2 \times 10^{14}$ с⁻¹ [15] и $v_{ep\lambda} = 3.7 \times 10^{13}$ с⁻¹ [16], $C_{lat} = 2.5 \times 10^7$ эрг·см⁻³·К⁻¹, $a \simeq 1$, $b \simeq 2$ [17]. Для зависящих от температуры функций C_e и G используем аппроксимации [17], отвечающие данным работы [18]:

$$C_e = C_{Au} T [1 + 3.37(10^{-4} T) - 1.28(10^{-4} T)^2],$$

$$G = G_{Au} [1 + 5(10^{-4} T)^2 - 0.79(10^{-4} T)^4],$$

где температура измеряется в градусах Кельвина, а $C_{Au} \simeq 5.25 \times 10^2$ эрг·см⁻³·К⁻² и $G_{Au} \simeq 2.7 \times 10^{18}$ эрг·с⁻¹·К⁻¹·см⁻³. Частоту ω примем равной 2×10^{15} с⁻¹.

Некоторые результаты численных расчетов представлены на рис.2–5. С учетом качественного сходства результатов для s- и p-поляризованного излучения в основном приводятся зависимости, отвечающие p-поляризованному излучению. На рис.2 показаны зависимости температуры от координаты, полученные для пленки толщиной $L = 2c/\omega_p \simeq 45$ нм и импульса с плотностью потока $I_0 = 0.7 \times 10^{12}$ Вт/см² и длительностью $\tau = 150$ фс ($t_p = 90$ фс). Сплошные кривые на рис.2 дают профиль температуры электронов в моменты времени $t = -t_p, 0, t_p$. Из сравнения этих кривых видно, как по мере действия импульса реализуется неоднородный нагрев электронов. Видно также, как из-за высокой теплопроводности электронов происходит выравнивание температуры по толщине пленки. Во время действия фемтосекундного импульса влияние медленной передачи энергии решетке на профиль температуры электронов весьма мало. Опуская в уравнении (33) слагаемое, содержащее G , можно видеть, что эффективность выравнивания температуры по толщине пленки при одновременном нагреве электронов характеризуется параметром

$$\beta = \frac{v_F^2 \tau_T}{3v_\lambda L T}, \quad (41)$$

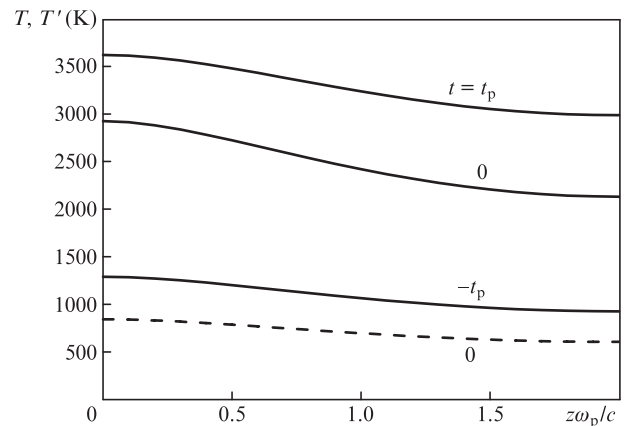


Рис.2. Зависимости температур электронов T (сплошные кривые) и решетки $T' = 50(T_{lat} - T_0)$ (штриховая кривая) от координаты при нагреве p-поляризованным излучением в различные моменты времени t . Расчет выполнен для пленки из золота при $t_p = 90$ фс, $I_0 = 0.7 \times 10^{12}$ Вт/см², $L = 2c/\omega_p$.

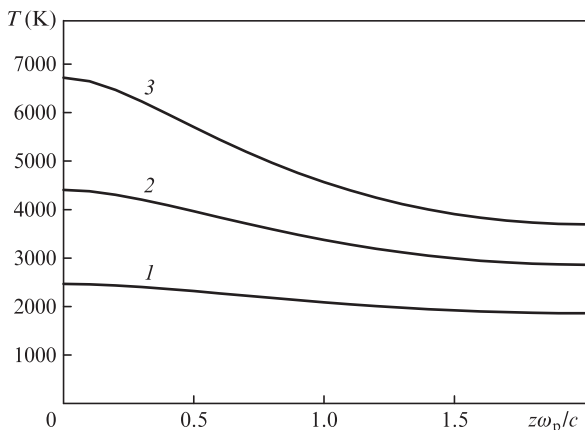


Рис.3. Профили температур электронов в момент времени $t = 0$ для плотностей потока энергии $I_0 = 0.5 \times 10^{12}$ (1), 1.5×10^{12} (2) и 3×10^{12} Вт/см² (3). Остальные параметры те же, что и для рис.2.

где τ_T и L_T – характерные время и масштаб, на котором происходит изменение температуры. Если толщина пленки больше c/ω_p , то на начальной стадии нагрева $L_T \approx c/\omega_p$. При небольшом изменении исходных частот ν и ν_λ для пленки из золота $\omega_p^2 \nu_F^2 \approx 3\nu_\lambda \nu c^2$ и в начале неоднородного нагрева имеем $\beta \approx \nu \tau_T > 1$, что отвечает сильному влиянию теплопроводности на профиль температуры. За время $\sim 1/\nu$ тепло выносится из скин-слоя и начинается прогрев остальной части пленки. К моменту времени $\tau_L \approx 3\nu_\lambda L^2/\nu_F^2$ тепловой поток достигает необлучаемой поверхности пленки. Если время действия импульса τ больше τ_L , то профиль температуры сглаживается по толщине пленки. Эти качественные соображения позволяют понять поведение сплошных кривых на рис.2. Штриховая кривая на рис.2 дает зависимость от координаты функции $T' = 50(T_{\text{лат}} - T_0)$ в момент времени $t = 0$. Видно, что за время действия импульса нагрев решетки из золота весьма мал.

При быстром сильном нагреве электронов ν и ν_λ возрастают пропорционально T^2 . В рамках применимости соотношений (35), (36) ν и ν_λ могут достигать величины $\sim \omega$. В условиях быстрого нагрева не только возрастают частоты столкновений, но и уменьшается время τ_T . В итоге уменьшается параметр β , и теплоотвод из скин-слоя становится менее эффективным. Вследствие уменьшения теплопроводности увеличивается и время выравнивания температуры по толщине пленки. Описанные закономерности иллюстрирует рис.3, где приведены профили температуры электронов в момент времени $t = 0$ для нескольких плотностей потока излучения. Из сравнения кривых видно, как по мере увеличения I_0 происходит увеличение крутизны профиля температуры.

Для демонстрации влияния толщины пленки на профиль температуры на рис.4 показаны зависимости температуры электронов от координаты z для пленок, толщина которых равна двум, четырем и шести глубинам скин-слоя. Видно, что приближение однородности температуры тем лучше, чем тоньше пленка. Аналогичные зависимости представлены и на рис.5 для пленки с $L = 2c/\omega_p$, нагреваемой импульсами s- и p-поляризованного излучения. Штриховыми кривыми на рис.5 приведены профили температуры пленки, имеющей толщину, равную четырем глубинам скин-слоя. Поскольку при поглощении s-поляризованного излучения нагрев слабее, то и профили температуры в пленке оказываются более однородными. Для

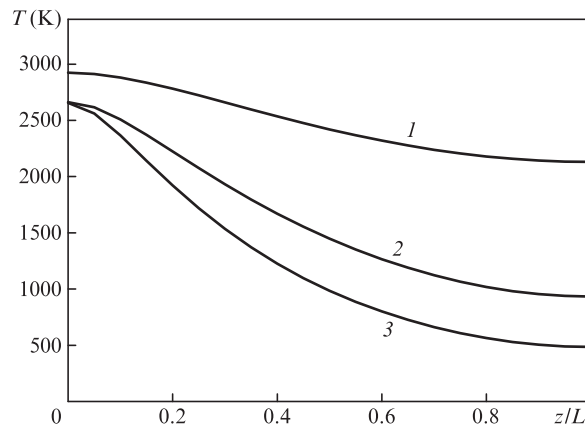


Рис.4. Профили температуры электронов в момент времени $t = 0$ в пленках толщиной $L = 2c/\omega_p$ (1), $4c/\omega_p$ (2) и $6c/\omega_p$ (3) при нагреве импульсами p-поляризованного излучения. Расчет выполнен для пленки из золота при $t_p = 90$ фс, $I_0 = 0.7 \times 10^{12}$ Вт/см².

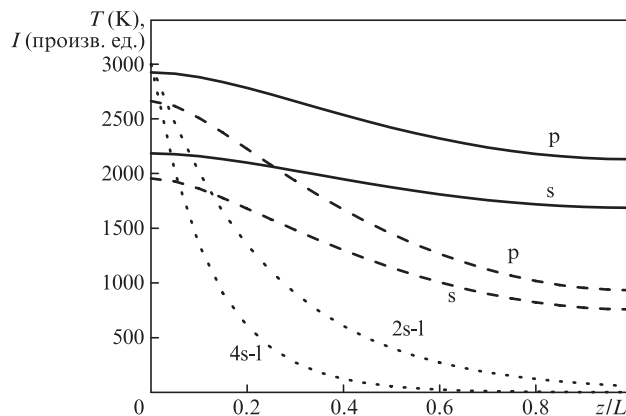


Рис.5. Те же зависимости, что и на рис.4, но при нагреве импульсами s- и p-поляризованного излучения пленок с $L = 2c/\omega_p$ (сплошные кривые) и $4c/\omega_p$ (штриховые кривые). Расчет выполнен для пленки из золота при $t_p = 90$ фс, $I_0 = 0.7 \times 10^{12}$ Вт/см². Пунктирные кривые 2s-l и 4s-l – профили плотности энергии поля I для пленок толщиной в два ($L = 2c/\omega_p$) и четыре ($L = 2c/\omega_p$) скин-слоя соответственно.

иллюстрации существенного влияния теплопроводности на профиль температуры на рис.5 пунктирными кривыми приведены профили плотности энергии поля в пленках толщиной $2c/\omega_p$ и $4c/\omega_p$. Из сравнения этих кривых с кривыми, отвечающими профилям температуры, видно, что без учета теплопроводности о той же точности приближения однородности температуры можно говорить лишь для пленок, толщина которых на порядок меньше глубины скин-слоя.

6. Заключение

Выше представлена сравнительно простая теория нагрева металлических нанопленок фемтосекундными импульсами s- или p-поляризованного излучения. На примере нагрева нанопленки из золота показано, что при толщинах пленки, больших глубины скин-слоя, во время действия импульса распределение температуры может быть близким к однородному. Такая возможность выявлена для не слишком коротких импульсов с относительно небольшой плотностью потока излучения. Однако именно рассмотренные импульсы с длительностью ~ 100 фс и

$I_0 \sim 10^{12}$ Вт/см² используются во многих экспериментах. Вместе с тем, представленные закономерности нагрева позволяют сформулировать и те условия, при которых необходимо отказаться от приближения однородности температуры либо вообще не использовать понятие температуры, а привлекать более детальное кинетическое описание. Такая необходимость возникает для аномально коротких импульсов, имеющих длительность меньше или порядка времени свободного пробега, а также для импульсов с большой плотностью потока, когда реализуется нагрев электронов до температур, при которых частота столкновений становится сравнимой с частотой излучения. Отметим также, что, хотя количественный анализ выполнен лишь для пленки из золота, основные выводы справедливы и для пленок из других типичных металлов.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант №13-02-01377) и программы Президиума РАН №24.

1. Brorson S.D., Fujimoto J.G., Ippen E.P. *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 1962 (1987).
2. Cao J., Gao Y., Elsayed-Ali H.E., Miller R.J.D., Mantell D.A. *Phys. Rev. B*, **58**, 10948 (1998).
3. Forsman A., Ng A., Chiu G., More R.M. *Phys. Rev. E*, **58**, R1248 (1998).
4. Gallant P., Kieffer J.C., Dorchies F., Peyrusse O. *Phys. Plasmas*, **10**, 557 (2003).
5. Kubo A., Onda K., Petek H., Sun Z., Jung Y.S., Kim H.K. *Nano Lett.*, **5**, 1123 (2005).
6. Kanavin A.P., Mishchik K.N., Uryupin S.A. *J. Rus. Laser Res.*, **29**, 123 (2008).
7. Бежанов С.Г., Канавин А.П., Урюпин С.А. *Квантовая электроника*, **41**, 447 (2011).
8. Milchberg H.M., Freeman R.M., Davey S.C., More R.M. *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2364 (1998).
9. Guo C., Rodriguez G., Taylor A.J. *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 1638 (2001).
10. Бежанов С.Г., Канавин А.П., Урюпин С.А. *Оптика и спектроскопия*, **114**, 102 (2013).
11. Каганов М.И., Лифшиц И.М., Танатаров Л.В. *Атомная энергия*, **6**, 391 (1959).
12. Анисимов С.И., Капелиович Б.Л., Перельман Т.Л. *ЖЭТФ*, **66**, 776 (1974).
13. Гуржи Р.Н. *ЖЭТФ*, **35**, 965 (1958).
14. Balasubramni T., Kim S.H., Jeong S.H. *Appl. Surf. Sci.*, **255**, 9601 (2009).
15. Johnson P.B., Christy R.W. *Phys. Rev. B*, **6**, 4370 (1972).
16. *Таблицы физических величин (справочник)*. Под ред. И.К.Кикоина (М.: Энергоиздат, 1976).
17. Бежанов С.Г., Канавин А.П., Урюпин С.А. *Квантовая электроника*, **42**, 447 (2012).
18. Lin Zh., Zhigilei L.V., Celli V. *Phys. Rev. B*, **77**, 075113 (2008).