Письма в ЖЭТФ, том 103, вып. 7, с. 495 – 500 © 2016 г. 10 апреля

Диагностика рассеяния электронов в металлах по терагерцовому отклику на фемтосекундные лазерные импульсы

И. В. Оладышкин[1)]

Институт прикладной физики РАН, 603950 Нижний Новгород, Россия

Поступила в редакцию 26 ноября 2015 г.
После переработки 16 февраля 2016 г.

Предложен новый метод экспериментального определения характеристик рассеяния электронов в металле, основанный на явлении оптико-терагерцовой конверсии. Показано, что измерение характеристик низкочастотного сигнала, генерируемого при отражении фемтосекундного лазерного импульса от поверхности металла, позволяет определить температурную зависимость частоты электронных столкновений,а также восстановить динамику процессов нагрева и теплопереноса. Имеющиеся экспериментальные данные по оптико-терагерцовой конверсии на поверхности металла проанализированы с точки зрения диагностики.

DOI: 10.7868/S0370274X1607002X

1. Введение. Нелинейная спектроскопия металлов в оптическом диапазоне получила новые перспективы развития благодаря прогрессу в технике генерации коротких лазерных импульсов [1, 2]. Воздействие на металл фемтосекундных оптических импульсов интенсивностью до нескольких ТВт/см^2 дает возможность экспериментально исследовать весьма слабые нелинейные эффекты [3–12], избегая при этом теплового разрушения образца. Так, например, к настоящему моменту достаточно подробно изучена генерация второй и третьей гармоник падающего оптического излучения, а также проанализированы потенциальные применения этих процессов в дистанционной диагностике металлов или металлических наночастиц [2, 12]. Однако экспериментальное исследование взаимодействия мощных фемтосекундных импульсов с металлами вызывает значительные трудности из-за кратковременности всех протекающих процессов [1]. Основные методы диагностики в этих условиях связаны с использованием зондирующих импульсов, которыми металл облучается с известной задержкой относительно основного импульса накачки [1, 12].

Вместе с тем в течение последнего десятилетия активно развивается новая область нелинейной оптики металлов – генерация низкочастотного излучения при отражении от поверхности металлов оптических импульсов фемтосекундной длительности. В экспериментальных работах [3, 4] был впервые обнаружен терагерцовый (ТГц) отклик металлов на фемтосекундные лазерные импульсы. В дальнейшем особенности процесса генерации были исследованы в работах [5, 6, 10]. Важно отметить, что наблюдаемый низкочастотный сигнал имеет длительность от одной до нескольких пикосекунд, что превосходит длительность оптического импульса на 1–2 порядка.

В течение последних 3–4 лет были построены микроскопические модели процесса генерации [7–11], учитывающие пондеромоторное и тепловое воздействие оптического поля. В работе [11] было показано, что тепловая модель дает количественное объяснение наиболее сложным характеристикам ТГц-отклика, таким, как длительность и полная энергия сигнала, а также резкое ослабление генерации при использовании тонкой фольги [5]. Таким образом, генерация низкочастотного излучения при отражении от поверхности металла фемтосекундных лазерных импульсов достаточно подробно экспериментально и теоретически исследована. Однако использование отклика металла в диапазоне 10^{11}–10^{13} Гц как средства диагностики, насколько нам известно, ранее не обсуждалось.

Цель настоящей работы – привлечь внимание к исследованию характеристик металлов по терагерцовому отклику на воздействие фемтосекундных лазерных импульсов. В основе используемой нами теоретической модели лежит тепловой механизм генерации ТГц-излучения [11], обобщаемый на случай температурно-зависимой частоты столкновений электронов. Обсуждается метод экспериментального определения зависимости частоты столкновений электронов от их температуры (до нескольких эВ)

[1)]e-mail: oladyshkin@gmail.com

в холодной кристаллической решетке. Рассмотрена конкретная зависимость частоты столкновений от температуры. Проанализирована возможность измерения числового коэффициента, определяемого зонной структурой металла и отвечающего за интенсивность рассеяния. Кроме того, в работе показано, что временная форма терагерцового сигнала позволяет восстановить динамику температуры электронов на поверхности металла во время и после воздействия лазерного излучения.

Тема представляется весьма актуальной, поскольку количественные характеристики рассеяния электронов в металлах исследованы недостаточно и существенно разнятся в зависимости от источника [13–20]. При этом процессы рассеяния электронов при высоких температурах являются определяющими во многих прикладных задачах, таких как лазерная абляция, нелинейное отражение и поглощение, аномальная диффузия, генерация гармоник поля при высоких интенсивностях и многие другие.

2. Генерация низкочастотных полей. Рассмотрим фемтосекундный оптический импульс длительностью τ_p, падающий под некоторым углом α на поверхность металла (см. рис. 1). Предположим, что

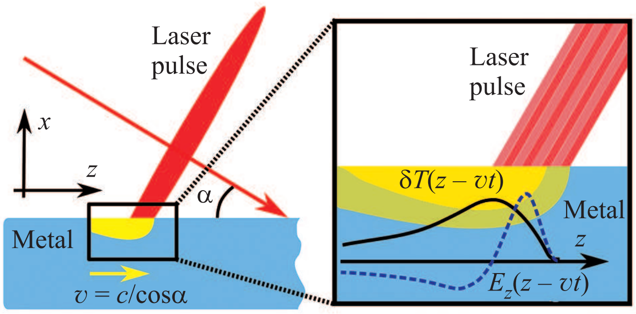

Рис. 1. Общая схема генерации низкочастотного излучения на поверхности металла за счет быстрого неоднородного нагрева электронов фемтосекундным лазерным импульсом. В процессе отражения импульса неоднородное распределение температуры $\delta T(z-\nu t)$ движется вдоль границы со сверхсветовой фазовой скоростью

диаметр лазерного пучка много больше величины $c\tau_p$ (c – скорость света в вакууме; приближение хорошо выполняется в известных нам экспериментах по генерации ТГц-излучения [3–6, 10]). В такой геометрии в каждый момент времени лазерное излучение воздействует на узкую полосу на поверхности металла, движущуюся вдоль границы со сверхсветовой фазовой скоростью $v = c/\cos\alpha$ [8, 11].Вследствие этого образуется бегущее неоднородное распределение температуры электронов. Распространение фронта нагрева вдоль поверхности наблюдалось экспериментально, например в работе [21], посвященной лазерной абляции (см. рис. 2 из [21]). Как было показано в статье [11], в такой геометрии движущееся распределение температуры порождает низкочастотное поле излучения

$$E_z = -\frac{2}{3e}\frac{\partial\varepsilon}{\partial z}, \tag{1}$$

где E_z – тангенциальная составляющая поля излучения на поверхности металла, $\varepsilon(x, y, z - vt)$ – средняя кинетическая энергия одного электрона, e – элементарный заряд, значение производной $\partial/\partial z$ берется на границе раздела. Выражение (1) было получено в статье [11]. Для дальнейшего изложения оно является ключевым. Это выражение представляет собой решение системы уравнений Максвелла и уравнений гидродинамики электронного газа в полуограниченной среде с произвольным бегущим распределением энергии электронов $\varepsilon(x, y, z - vt)$. Данное решение справедливо в случае, когда время изменения функции ε много больше обратной плазменной частоты металла ω_p^{-1}, а радиус экранирования Томаса–Ферми много меньше всех характерных пространственных масштабов ε. Указанные ограничения фактически не снижают общности рассмотрения из-за малости периода плазменных колебаний ($\sim 10^{-16}$ с) и радиуса Томаса–Ферми (~ 1 Å). Характерное время релаксации тепла из оптического скин-слоя составляет порядка 1 пс [1, 11, 14], что соответствует частоте 1 ТГц.

Низкочастотное магнитное поле непосредственно над металлом может быть найдено из уравнений Максвелла в вакууме:

$$H_y(x = +0) = \frac{E_z(x = +0)}{\sin\alpha}. \tag{2}$$

Интегрируя поток электромагнитной энергии с поверхности металла, можно получить выражение для полной энергии низкочастотного сигнала W_{THz}:

$$W_{\mathrm{THz}} \cong \frac{c}{9\pi e^2 \sin\alpha} \iint \left(\left.\frac{\partial\varepsilon}{\partial z}\right|_{x=0}\right)^2 dt dS, \tag{3}$$

где интегрирование ведется по площади оптического пучка на поверхности металла S и по времени t. Излучаемый сигнал будет сонаправлен с отраженным оптическим излучением в силу черенковского синхронизма [8, 10, 11].

Из выражения (1) следует, что форма низкочастотного сигнала однозначным образом воспроизводит временную зависимость температуры электронов на границе раздела (излучаемое электрическое поле пропорционально временной производной от тепловой энергии электронов). Это означает, что определение временной формы терагерцового импульса может служить средством экспериментального наблюдения динамики нагрева и релаксации тепла в приповерхностной области металла.

Далее будет рассмотрена конкретная модель нагрева электронного газа за счет электрон-фононных и электрон-электронных столкновений. На ее примере будет продемонстрирована возможность экспериментального определения характеристик рассеяния по "излому" на зависимости W_{THz} от энергии лазерного импульса.

3. Нагрев электронов и диффузия тепла. Для вырожденного электронного газа в металле необходимо различать такие параметры, как средняя кинетическая энергия ε и температура T. Далее мы будем считать изменение средней энергии электрона за счет нагрева малым по сравнению с энергией Ферми ε_{F}, что справедливо при неразрушающем воздействии [1, 14, 15]. В этом случае средняя энергия электрона ε является квадратичной функцией температуры электронного газа [22]:

$$\varepsilon \cong \frac{3}{5}\varepsilon_{\mathrm{F}}\left(1+\frac{5\pi^2}{12}\frac{T^2}{\varepsilon_{\mathrm{F}}^2}\right), \qquad (4)$$

а теплоемкость C линейно зависит от температуры:

$$C = \frac{\pi^2}{2}\frac{T}{\varepsilon_{\mathrm{F}}}. \qquad (5)$$

Также будем считать, что длина свободного пробега электрона мала по сравнению с глубиной прогрева металла и релаксацию тепла можно описывать уравнением теплопроводности с источником [1, 11, 14, 15, 17, 18]:

$$\frac{\partial\varepsilon}{\partial t} = \frac{e^2E_\tau^2}{2m\omega^2}\nu + \frac{\partial}{\partial x}\left(D\frac{\partial\varepsilon}{\partial x}\right), \qquad (6)$$

где D – коэффициент температуропроводности (см^2/с), E_τ – амплитуда тангенциального электрического поля на поверхности металла, ν – частота столкновений электронов, ω – частота оптического излучения, e и m – заряд и эффективная масса электрона соответственно. Предполагается, что частота столкновений ν много меньше оптической частоты ω, а масштаб распределения тепловой энергии вдоль поверхности металла намного превосходит поперечный масштаб.

Рассмотрим широко используемую модель нагрева электронного газа, в которой суммарная частота столкновений ν складывается из частот электрон-электронных и электрон-фононных столкновений [17–19]:

$$\nu \cong \nu_{ph}\frac{T_{\mathrm{lat}}}{T_0} + a\frac{T^2}{\hbar\varepsilon_{\mathrm{F}}}, \qquad (7)$$

где ν_{ph} – частота электрон-фононных столкновений при начальной температуре T_0, T_{lat} – текущая температура кристаллической решетки, T – температура электронов, a – численный коэффициент, зависящий от зонной структуры металла. Первое и второе слагаемые в выражении (7) описывают частоты электрон-фононных и электрон-электронных столкновений соответственно. В данном случае имеются в виду электрон-электронные столкновения, в которых импульс не сохраняется (о столкновениях с перебросом см. подробнее в [19]). Здесь и далее мы считаем, что рассеяние на примесях и дефектах кристаллической решетки несущественно.

Особенности воздействия фемтосекундных лазерных импульсов на металлы связаны с переходом облучаемой системы в неравновесное двухтемпературное состояние, когда электроны сильно нагреты, а решетка сохраняет прежнюю температуру. Время релаксации тепла из оптического скин-слоя типичного металла составляет около 1 пс [1, 11, 14], а время установления теплового равновесия с кристаллической решеткой – порядка 1–10 пс [1, 14, 17, 20, 21]. Если лазерный импульс имеет длительность 30–100 фс,то процессы нагрева и перераспределения тепла можно рассматривать отдельно друг от друга, считая при этом температуру кристаллической решетки T_{lat} постоянной и равной T_0.

Излучаемый сигнал (1) формируется, пока электронная подсистема в некоторой точке поверхности не пришла в равновесие, и должен включать два характерных временных масштаба: время нагрева, т.е. длительность лазерного импульса (30–100 фс), и время релаксации тепла (~ 1 пс). В условиях известных нам экспериментов [4–6, 10] диапазон измерения приборов был ограничен сверху частотой порядка 1.5–2 ТГц. Поэтому в дальнейшем расчет энергии низкочастотного импульса будет приводиться именно для этой части спектра.

С учетом температурной зависимости (7) и соотношения (4) уравнение (6) для нагрева электронов в оптическом скин-слое будет выглядеть следующим образом:

$$\frac{\partial\Delta\varepsilon}{\partial t} = \left(\nu_{ph} + \frac{4a}{9\pi^2}\frac{\Delta\varepsilon}{\hbar}\right)\frac{e^2E_\tau^2(t)}{2m\omega^2}, \qquad (8)$$

где $\Delta\varepsilon = \varepsilon - \frac{3}{5}\varepsilon_{\mathrm{F}}$. Решение уравнения (8) можно найти для произвольного лазерного импульса $E_\tau(t)$:

$$\Delta\varepsilon(t) = \frac{3\pi^2}{4a}\hbar\nu_{ph}\left[\exp\left(\frac{2a}{9\pi^2\hbar}\int\limits_{-\infty}^{t}\frac{e^2E_\tau^2(t)}{m\omega^2}dt\right)-1\right]. \quad (9)$$

Выражение (9), в частности, показывает, что при росте амплитуды лазерного излучения зависимость тепловой энергии электронов от интенсивности поля из линейной переходит в экспоненциальную. В экспериментах при неразрушающем воздействии интенсивность лазерного излучения может достигать 80 мДж/см^2 [6, 10]. При этом тепловая энергия электронов может возрастать на величину более 1 эВ.

После нагревания электронов в скин-слое металла происходит диффузия тепла. В зависимости от соотношения длины свободного пробега электрона и глубины скин-слоя диффузия может носить нормальный или аномальный характер. Мы будем следовать широко распространенному в описании подобных процессов подходу [1, 11, 14, 15, 17, 18] и рассматривать уравнение диффузионного типа (6), используя не зависящий от температуры электронов коэффициент температуропроводности $D = v_{\mathrm{F}}^2/3\nu_\lambda$, где ν_λ – эффективная частота столкновений электронов, определяющая длину свободного пробега и не совпадающая в общем случае с ν. Основной вклад в ν_λ вносят электрон-электронные столкновения с сохранением импульса, которые не влияют на проводимость и имеют частоту порядка 10^{15}–10^{16} с$^{-1}$.

Оценка характерного времени релаксации тепла τ для уравнения (6) дает $\tau \approx l_{sk}^2/D_0$, где l_{sk} – глубина изначально нагретого скин-слоя. В рассматриваемом диапазоне температур электронов глубину оптического скин-слоя можно считать постоянной и равной c/ω_p (где ω_p – плазменная частота).

4. Возможности диагностики. Перейдем к определению энергии низкочастотного сигнала (3), который будет излучаться в процессе релаксации тепла после прохождения лазерного импульса. В дальнейшем нам будет важен в первую очередь вид функциональной зависимости энергии W_{THz} от других параметров. Поэтому при вычислении энергии (9) мы заменим интегрирование по времени умножением на длительность лазерного импульса τ_p. Аналогично будем использовать характерную длительность излучаемого сигнала τ и площадь лазерного пучка S. Подставляя выражение (9) в формулу (3), получим следующую оценку для предельного случая высоких интенсивностей (экспонента в формуле (9) много больше единицы):

$$W_{\mathrm{THz}} \cong \frac{\pi^3 S}{16a^2ce^2\sin^2\alpha}\frac{D_0}{l_{sk}^2}(\hbar\nu_{ph})^2\exp\left(\frac{4a\tau_p}{9\pi^2\hbar}\frac{e^2E_\tau^2}{m\omega^2}\right). \quad (10)$$

В противоположном предельном случае, когда нагрев достаточно слаб, находим

$$W_{\mathrm{THz}} \cong \frac{S}{36\pi c\sin^2\alpha}\frac{D_0}{l_{sk}^2}\frac{e^2E_\tau^4}{m^2\omega^4}(\tau_p\nu_{ph})^2. \quad (11)$$

Важно подчеркнуть, что зависимость W_{THz} от мощности падающего лазерного импульса имеет “излом”, поскольку энергия низкочастотного сигнала растет сначала квадратично, а затем экспоненциально. Переход происходит при интенсивности оптического поля, в котором энергия осцилляций электрона сопоставима с энергией

$$W^* = \frac{9\pi^2\hbar}{8a\tau_p}, \quad (12)$$

определяющейся лишь длительностью лазерного импульса и одним феноменологическим параметром металла a. Это означает, что измерение зависимости W_{THz} от интенсивности лазерного импульса является способом экспериментального определения данного параметра, характеризующего частоту электрон-электронных столкновений. Кроме того, сама величина энергии терагерцового сигнала в слабо-нелинейном или сильно-нелинейном режиме ((11) или (10)) позволяет найти частоту ν_{ph}.

Развитый подход позволяет успешно интерпретировать известные данные по конверсии мощных оптических импульсов в терагерцовое излучение на поверхности металлов [4, 6, 10] и найти значения параметра a по экспериментальным графикам. Так, например, в работе [4] приведены экспериментальные кривые для золота и серебра, свидетельствующие о неквадратичном характере конверсии в диапазоне интенсивностей до 6 мДж/см^2. Невозможность однозначной степенной аппроксимации кривых можно объяснить тем, что, по-видимому, в эксперименте было зафиксировано начало перехода от квадратичной зависимости к экспоненциальной. В данном случае можно лишь приблизительно оценить значение параметра a (порядка 10). Эта оценка отчасти подтверждается новыми экспериментальными данными по рассеянию горячих электронов в золоте из работы [13], где установлено, что частота электрон-электронных столкновений примерно на порядок превосходит ожидаемое значение (например, в работах [17, 18] значение a выбирается в диапазоне от 0.5 до 2). На данный момент вопрос остается до конца не исследованным.

Опираясь на экспериментальные данные из работы [10], можно определить пороговое значение интенсивности падающего оптического излучения для меди: около 20 мДж/см^2. Отсюда получаем, что в аппроксимационной формуле для частоты электронных столкновений (7) параметр a для меди примерно равен 5.

Для предлагаемого метода выбор аппроксимации (7) не принципиален. Можно сделать обобщение на случай неизвестной температурной зависимости эффективной частоты столкновений электронов, например следующего вида:

$$\nu = \nu_0 + \beta T^n \ (n < 2). \quad (13)$$

Тогда зависимость энергии низкочастотного сигнала от энергии лазерного импульса W_{opt} по мере роста интенсивности будет переходить от квадратичной (11) к зависимости вида

$$W_{\mathrm{THz}} \propto W_{\mathrm{opt}}^{\frac{4}{2-n}}. \quad (14)$$

Здесь предполагалось, что электронный газ в металле вырожден, а коэффициент температуропроводности D равен $\nu_{\mathrm{F}}^2/3\nu$. Таким образом, экспериментальное определение зависимости $W_{\mathrm{THz}}\ (W_{\mathrm{opt}})$ позволяет восстановить температурную зависимость частоты столкновений электронов. Это может оказаться актуальным для исследования металлов со сложной электронной структурой, в которых зависимость $\nu(T)$ в области высоких температур достоверно не известна [13, 20].

5. Заключение. В работе предложен новый метод измерения характеристик рассеяния и теплопроводности электронов в металлах, основанный на наблюдении терагерцового отклика на воздействие фемтосекундных лазерных импульсов. Экспериментальная зависимость энергии терагерцового сигнала W_{THz} от энергии лазерного импульса W_{opt} интерпретирована как следствие температурной зависимости частоты столкновений электронов (7). Получено выражение для интенсивности оптического поля, при которой функция $W_{\mathrm{THZ}}(W_{\mathrm{opt}})$ переходит от квадратичного вида к экспоненциальному. На основе развитой модели предложен метод измерения константы a, характеризующей интенсивность электрон-электронного рассеяния и зависящей только от зонной структуры металла [17, 18]. В более общем случае неизвестную зависимость эффективной частоты столкновений от температуры $\nu(T^n)$ также можно восстановить посредством экспериментального определения зависимости $W_{\mathrm{THz}}(W_{\mathrm{opt}})$.

Показано, что временная форма излучаемого низкочастотного сигнала позволяет восстановить динамику температуры электронов вблизи поверхности во время и после воздействия оптического излучения. Таким образом, сформулирован метод экспериментального наблюдения процессов перераспределения тепловой энергии в электронном газе на временах от десятков фемтосекунд до 1–2 пс, в том числе и в условиях аномальной теплопроводности.

По имеющимся экспериментальным данным выполнены оценки параметров электрон-электронного рассеяния в золоте и в меди. Полученные значения в целом согласуются с ожидаемыми.Надо отметить, что используемые в статьях разных авторов константы могут значительно различаться [13, 14, 17, 18]. Таким образом, характеристики электрон-электронного рассеяния в металлах требуют дальнейшего уточнения. В связи с этим экспериментальные методы, основанные на наблюдении низкочастотного отклика металлов на фемтосекундные лазерные импульсы, могут оказаться весьма актуальными.

Автор признателен В.А. Миронову, А.П. Протогенову, Д.А. Фадееву и И.Е. Илякову за плодотворные обсуждения результатов работы и текста рукописи. Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты # 14-22-02034 офи_м, 16-32-00717 мол_а, 16-02-01078 А).

1. В.П. Вейко, М.Н. Либенсон, Г.Г. Червяков, Е.Б. Яковлев, *Взаимодействие лазерного излучения с веществом*, Физматлит, М. (2008), гл. 6.
2. *Поверхностные поляритоны – электромагнитные волны на поверхностях и границах раздела сред*, под ред. В.М. Аграновича, Д.Л. Миллса, Наука, М. (1985).
3. D.J. Hilton, R.D. Averitt, C.A. Meserole, G.L. Fisher, D.J. Funk, J.D. Thompson, and A.J. Taylor, Opt. Lett. **29**, 1805 (2004).
4. F. Kadlec, P. Kuzel, and J.-L. Coutaz, Opt. Lett. **29**, 2674 (2004).
5. F. Kadlec, P. Kuzel, and J.-L. Coutaz, Opt. Lett. **30**, 1402 (2005).
6. E.V. Suvorov, R.A. Akhmedzhanov, D.A. Fadeev, I.E. Ilyakov, V.A. Mironov, and B.V. Shishkin, Opt. Lett. **37**, 2520 (2012).
7. S.A. Uryupin and A.A. Frolov, JETP **114**(5), 878 (2012).
8. V.A. Mironov, I.V. Oladyshkin, E.V. Suvorov, and D.A. Fadeev, JETP **119**(2), 179 (2014).
9. S.A. Uryupin and A.A. Frolov, Tech. Phys. **84**(6), 107 (2014).
10. R.A. Akhmedzhanov, I.E. Ilyakov, V.A. Mironov, I.V. Oladyshkin, E.V. Suvorov, D.A. Fadeev, and B.V. Shishkin, Radiophys. Quantum Electronics **57**, 807 (2015).
11. I.V. Oladyshkin, D.A. Fadeev, and V.A. Mironov, J. Optics **17**, 075502 (2015).

12. H. Shen, N. Nguyen, D. Gachet, V. Maillard, T. Toury, and S. Brasselet, Opt. Express **21**, 12318 (2013).
13. C. Fourment, F. Deneuville, D. Descamps, F. Dorchies, S. Petit, O. Peyrusse, B. Holst, and V. Recoules, PRB **89**, 161110(R) (2014).
14. E. G. Gamaly, A. V. Rode, B. Luther-Davies, and V. T. Tikhonchuk, Phys. Plasmas **9**, 949 (2002).
15. С. И. Анисимов, Б. С. Лукьянчук, УФН **172**, 301 (2002).
16. Б. М. Смирнов, УФН **170**, 495 (2000).
17. С. Г. Бежанов, А. П. Канавин, С. А. Урюпин, Квант. электрон. **41**, 447 (2011).
18. S. G. Bezhanov, A. P. Kanavin, and S. A. Uryupin, Quantum Electronics **44**,859 (2014).
19. А. А. Абрикосов, *Основы теории металлов*, Наука, М. (1987), ч. I, гл. IV.
20. N. A. Inogamov and Y. V. Petrov, JETP **110**, 446,(2010).
21. D. von der Linde and K. Sokolowski-Tinten, Appl. Surf. Sci. **154–155**, 1 (2000).
22. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика. Статистическая физика.* Ч. I, 3-е изд., испр., Наука, Физматлит, М. (1976), т. V, 584 с.