ДОКЛАДЫ АКАДЕМИИ НАУК, 2019, том 485, № 4, с. 438–441

МЕХАНИКА

УДК 534-16

О ТЕРМОАКУСТИКЕ ПРОВОДЯЩИХ МАТЕРИАЛОВ ПРИ ЛАЗЕРНОМ ВОЗДЕЙСТВИИ

Академик РАН **Н. Ф. Морозов**[1,2], **К. Л. Муратиков**[3], **Б. Н. Семенов**[1,2],
член-корреспондент РАН **Д. А. Индейцев**[1,2], **Д. С. Вавилов**[1,2,*]

Поступило 28.11.2018 г.

В рамках однотемпературной модели термоупругости выполнен анализ влияния процессов локализации электронов на термоупругий отклик проводников при импульсном лазерном воздействии. Показано, что локализация электронов может приводить к существенному затягиванию деформационных процессов в проводниках по сравнению с процессами, развивающимися по обычному термоупругому механизму.

Ключевые слова: термоупругость, акустика, проводники, лазеры, локализация электронов.

DOI: https://doi.org/10.31857/S0869-56524854438-441

В современных методах исследования теплофизических и упругих свойств объёмных материалов и тонкоплёночных структур широко используется динамическое воздействие лазерного излучения [1]. В большинстве экспериментальных и теоретических работ этого направления генерация упругих деформаций и акустических волн осуществляется по термоупругому механизму. К числу первых теоретических работ, касающихся изучения генерации упругих деформаций в твёрдых телах по термоупругому механизму, можно отнести работы Даниловской [2, 3].

В настоящее время исследования в этой области продолжают активно развиваться для изучения динамических тепловых и упругих процессов в различных материалах от микро- и наносекундного [4–7] до пико- [8] и фемтосекундного диапазонов [9].

Применение разработанных теоретических подходов к металлам на первоначальной стадии лазерного воздействия также даёт качественно близкие к эксперименту результаты. На последующих стадиях для ряда металлов экспериментально было установлено значительное отклонение от теоретических результатов линейной термоупругости. Так, в работах [4, 5] показано, что для металлов характерно значительное затягивание деформационных процессов по сравнению с имеющимися теоретическими моделями. В связи с этим целью данной работы является рассмотрение возможной модификации модели термоупругости, позволяющей описать наблюдаемые в металлах процессы.

Для анализа характера требуемых дополнений к имеющемуся теоретическому подходу прежде всего остановимся на процессе теплопроводности, с которого начинается преобразование лазерного излучения в термоупругие деформации. В моделях термоупругости, не рассматривающих быстрых тепловых процессов, распространение тепла обычно описывается с помощью закона Фурье. Для преодоления ограничений классической модели теплопереноса в настоящее время предложен ряд моделей. В наиболее общей модели [10] для учёта релаксационных тепловых процессов в материале вводятся два времени запаздывания: τ_q — время термической релаксации, τ_T — время запаздывания градиента температуры. В случае металлов эти параметры были введены для учёта вкладов электрон-фононной и решёточной проводимости наряду с тепловой инерцией. В этой модели уравнение теплопроводности приобретает вид

$$\left(1+\tau_q\frac{\partial}{\partial t}\right)\mathbf{q}(\mathbf{x},t) = -K_T\left(1+\tau_T\frac{\partial}{\partial t}\right)\nabla T(\mathbf{x},t), \quad (1)$$

где $\tau_q = \dfrac{1}{G}\left(\dfrac{1}{C_i}+\dfrac{1}{C_e}\right)^{-1}$ — временна́я задержка вектора теплового потока, $\tau_T = C_i/G$ — временна́я задержка градиента температуры, C_i, C_e — объёмные теплоёмкости решётки и электронного газа соответственно, K_T — коэффициент теплопроводности, G — коэффициент связанности фонон-электронного взаимодействия [6].

Так как в металлах объёмная теплоёмкость электронного газа C_e меньше объёмной теплоёмкости

[1] Институт проблем машиноведения Российской Академии наук, Санкт-Петербург
[2] Санкт-Петербургский государственный университет
[3] Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской Академии наук, Санкт-Петербург
*E-mail: londr@yandex.ru

решётки C_i [10], то $\tau_q \le \tau_T$. Отставание вектора теплового потока τ_q коррелирует с временем релаксации электрон-электронных и электрон-фононных столкновений. Для большинства металлов $\tau_T \approx (1–10)\tau_q$ [6], а значение τ_q находится на уровне 10^{-10} с. Таким образом, применение модифицированных моделей теплопереноса характеризуется временами релаксации ~10^{-10} с. Поэтому применение моделей теплопереноса предлагаемого типа оказывается эффективным для пикосекундных лазерных воздействий. Наблюдаемые экспериментально особенности термоупругих сигналов от металлов при лазерном облучении проявляется в существенно более поздние моменты времени [4, 5], поэтому учёт временных задержек τ_q и τ_T не представляется достаточным.

В работе рассматривается модель, в соответствии с которой в металле присутствуют как свободные, так и связанные электроны. При этом поведение свободных электронов описывается законами для идеальных металлов. Связанные электроны подчиняются более сложным законам, для которых характерны процессы захвата на локализованные уровни и их перехода в свободное состояние. Влияние подобных процессов на электрическую проводимость материалов исследовалось в работе [11]. Под действием внешних воздействий часть электронов может переходить из одного состояния в другое. Экспериментальное изучение электропроводности разупорядоченных металлов показало, что времена её релаксации могут существенно превышать времена релаксации электронов в чистых металлах [12].

Проанализируем в рамках линейной термоупругости влияние процессов локализации электронов на динамические деформационные процессы в металлах. Будем предполагать, что число электронов, участвующих в процессах локализации, значительно меньше свободных, поэтому они практически не влияют на процессы теплопроводности, так как теплопроводность в металле осуществляется свободными электронами. В уравнении же движения, описывающем деформацию решётки, учтём объёмную силу, возникающую из-за изменения давления электронов при переходе части из них из одного состояния в другое. При указанных допущениях систему уравнений термоупругости можно записать в виде

$$\rho\frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} - \frac{E}{2(1+\nu)}\frac{\partial^2 u_i}{\partial x_l^2} - \frac{E}{2(1+\nu)(1-2\nu)}\frac{\partial^2 u_l}{\partial x_i \partial x_l} = -\frac{\alpha E}{1-2\nu}\frac{\partial T}{\partial x_i} - \frac{\partial p_e}{\partial x_i}, \quad (2)$$

$$\frac{\partial T(\mathbf{x}, t)}{\partial t} = \chi\Delta T(\mathbf{x}, t) + \frac{\chi}{K_T}Q(\mathbf{x}, t), \quad (3)$$

где ρ — плотность материала, E — модуль упругости, ν — коэффициент Пуассона, α — коэффициент теплового расширения, p_e — давление электронов на решётку, $Q(\mathbf{x}, t)$ — действующий внутри образца источник тепла, создаваемый лазерным излучением.

В равновесных условиях давление электронного газа уравновешивается решёткой, но динамические колебания давления электронов приводят к дополнительным деформациям решётки. Давление вырожденных свободных электронов в металле можно представить в виде суммы двух слагаемых [13]

$$p_e = \frac{2}{5}nE_F + \frac{\pi^2}{6}nE_F\left(\frac{k_B T_e}{E_F}\right)^2, \quad (4)$$

где n — концентрация свободных электронов, E_F — его энергия Ферми, T_e — температура электронов.

В соответствии с (4) изменение давления электронного газа в неидеальных металлах может происходить благодаря изменению обоих слагаемых, а не только слагаемого с температурой, как в идеальном металле. Оценки первого члена в выражении (4) показывают, что относительное изменение концентрации свободных электронов в металле порядка 10^{-3} может приводить к изменению давления на уровне 100 МПа. Примерно такое же изменение давления происходит за счёт повышения температуры свободных электронов в металле до 10^3 K. Таким образом, даже относительно небольшое изменение концентрации свободных электронов может привести к значительному изменению давления электронного газа металла.

Для определения деформаций решётки в соответствии с уравнением (2) при импульсном лазерном воздействии на металл проанализируем динамику изменения концентрации электронов, захватываемых центрами локализации. Для этого используем уравнение, описывающее динамику их переходов из одного состояния в другое, в виде

$$\frac{\partial n_t}{\partial t} + \operatorname{div}(n_t \mathbf{v}_d) = J, \quad (5)$$

где n_t — число локализованных электронов, $\mathbf{v}_d$ — средняя скорость их перемещения между процессами локализации, J — источник электронов, описывающий процессы их переходов между свободным и связанным состояниями.

Выражение для источника электронов выберем в виде

$$J = -\frac{n_t}{\tau} + (S - S_0), \quad (7)$$

где τ — время релаксации электрона между связанным и свободным состояниями, S — некоторый генерационный источник, стимулирующий переход электронов из связанного состояния в свободное.

Переход электронов между связанным и свободным состояниями носит активационный характер [12]. В соответствии с результатами работы по электропроводности разупорядоченных металлов [12] будем считать, что процессы перехода электронов происходят в соответствии с законом Аррениуса. Тогда для источника S можно использовать выражение

$$S = A\exp\left(-\frac{U}{k_BT}\right), \quad (8)$$

где A — некоторая константа, U — энергия активации, k_B — постоянная Больцмана.

Будем предполагать, что при лазерном воздействии на образец выполняется условие $\frac{U}{k_BT} < 1$. Тогда в первом приближении по параметру $\frac{U}{k_BT}$ получим

$$S - S_0 = B(T - T_0), \quad B = \frac{AU}{k_BT_0^2}\exp\left(-\frac{U}{k_BT_0}\right), \quad (9)$$

где T_0 — равновесное значение температуры.

Рассмотрим в уравнении баланса (5) член с дивергенцией. При воздействии на металл лазерного импульса и образовании градиента температуры в нём генерируется эдс Зеебека [5]. Её типичное значение составляет несколько микровольт на градус. Уравнение (5) можно упростить и записать в виде

$$\frac{\partial n_t}{\partial t} + \frac{n_t}{\tau} = -B(T - T_0). \quad (10)$$

Если в начальном состоянии концентрация локализованных электронов составляла $n_t^{(0)}$, то в последующие моменты времени она будет определяться выражением

$$n_t(x, t) = n_t^{(0)} - B\int_0^t dt'e^{-(t-t')/\tau}(T(x, t') - T_0). \quad (11)$$

Уменьшение концентрации локализованных электронов при повышении температуры будет приводить к такому же увеличению концентрации свободных электронов и увеличению их давления в соответствии с равенством (4). При температурах электронов $T_e \le \frac{2E_F}{\pi k_B}$ основной вклад в давление будет давать первый член. Для реальных металлов это соотношение справедливо до температур $T_e \approx 10^3$ K. Ограничиваясь этим диапазоном температур, изменение давления электронного газа будем определять соотношением

$$\Delta p_e(x, t) = \frac{2}{3}E_F\Delta n_t = \\ = \frac{2}{3}E_FB\int_0^t dt'e^{-(t-t')/\tau}(T(x, t') - T_0). \quad (12)$$

Изменение давления электронного газа (12) должно быть учтено в уравнении движения (4). Тогда его решение будет состоять из двух слагаемых. Первое представляет собой решение задачи термоупругости, полученное Даниловской [2, 3], и в дальнейшем рассматриваться не будет. Второе характерно только для проводников.

При исследуемых временах эксперимента глубина распространения тепловых импульсов в образцах не превышала несколько десятков микрон и была значительно меньше их толщины. Поэтому теплофизические процессы протекали в приповерхностных областях образцов и действие объёмных источников в уравнении (4) в условиях работ [4, 5] можно заменить граничным условием

$$\left(\frac{1-\nu}{1+\nu}\frac{\partial(u_T + u_e)}{\partial x} - \alpha T\right)\Bigg|_{x=0} = -\frac{1-2\nu}{E}\Delta p_e\Bigg|_{x=0}. \quad (13)$$

Решение уравнения движения (4) для деформации u_e при нулевых начальных условиях и граничном условии (13) получим в виде

$$u_e(x, t) = \begin{cases} 0 \quad \text{при } 0 < t \le \dfrac{x}{c}, \\ c\dfrac{1+\nu}{1-\nu}\dfrac{1-2\nu}{E}\displaystyle\int_0^{t-x/c} ds\Delta p_e(0, s) \ \text{ при } t > \dfrac{x}{c}, \end{cases} \quad (14)$$

где c — скорость звука.

Выражения (12) и (14) позволяют найти сигнал пьезодатчика $V_e(t)$, генерируемый электронной подсистемой металла:

$$V_e(t) = K\ddot{u}_e(d, t) = \\ = \begin{cases} 0 \quad \text{при } 0 < t \le \dfrac{d}{c}, \\ K'\displaystyle\int_0^{t-d/c} dt'e\exp\left(\frac{t - d/c - t'}{\tau}\right)(T(0, t') - T_0) \quad (15) \\ \quad \text{при } t > \dfrac{d}{c}, \end{cases}$$

где $K' = \frac{2}{3}\frac{1+\nu}{1-\nu}\frac{1-2\nu}{E}cKE_F B$.

Можно принять, что источник тепла в образце имеет вид $Q(x, t) = P\delta(t)\delta(x)$, где P — энергия лазерного импульса. Тогда при отсутствии теплоотвода от образца сигнал при $t > d/c$ определяется равенством

$$V_e(t) = \frac{K'P}{K_T}\sqrt{\frac{\chi}{\pi}}\int_0^{t-d/c} dt' \frac{\exp\left(\frac{t-d/c-t'}{\tau}\right)}{\sqrt{t'}}. \quad (16)$$

Выражение (16) хорошо соответствует теоретическому результату работ [4, 5], полученному для пьезоэлектрического отклика металлов в рамках модели “теплового поршня”. Таким образом, линейная теория термоупругости способна описывать поведение динамических деформаций в металлах при лазерном облучении с учётом процессов перехода электронов из локализованного состояния в свободное.

Источник финансирования. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант № 15–19–00182).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Khafizov M.*, *Pakarinen J.*, *He L.*, *et al.* // Acta Materialia. 2016. V. 112. P. 209–215.
2. *Даниловская В.И.* // ПММ. 1952. Т. XVI. № 3. С. 342–344.
3. *Даниловская В.И.* // Изв. АН СССР. Механика и машиностроение. 1959. № 3. С.129–132.
4. *Вовненко Н.В.*, *Зимин Б.А.*, *Судьенков Ю.В.* // ЖТФ. 2011. Т. 81. № 6. С. 57–62.
5. *Sudenkov Yu.V.*, *Zimin B.A.* // Int. J. Heat and Mass Transfer. 2015. V. 85. P. 781–786.
6. *Индейцев Д.А.*, *Осипова Е.В.* // ДАН. 2017. Т. 473. № 2. С. 154–158.
7. *Vega-Flick A.*, *Eliason J.K.*, *Maznev A.A.*, *et al.* // Rev. Sci. Instrum. 2015. V. 86. 123101 (4 pages).
8. *Matsuda O.*, *Larciprete M.C.*, *Voti R.L.*, *et al.* // Ultrasonics. 2015. V. 56. P. 3–20.
9. *Rublack T.*, *Seifert G.* // Opt. Material Express. 2011. V. 1. № 4. P. 543–550.
10. *Tzou D.Y.* Macro- to Micro-Scale Heat Transfer: The Lagging Behavior. 2nd ed. West Sussex (UK): Wiley, 2015. 1298 p.
11. *Cutler M.*, *Mott N.F.* // Phys. Rev. 1969. V. 181. № 3. P. 1336–1340.
12. *Eisenbach A.*, *Havdala T.*, *Delahaye J.*, *Grenet T.*, *Amir A.*, *Frydman A.* // Phys. Rev. Lett. 2016. V. 117. 116601 (5 pages).
13. *Ландау Л.Д.*, *Лифшиц Е.М.* Статистическая физика. 5-е изд. М.: Физматлит, 2002. Ч. 1. 616 с.

ON THE PROBLEM OF THERMOACOUSTICS OF CONDUCTIVE MATERIALS UNDER LASER IRRADIATION

Academician of the RAS N. F. Morozov[1,2], K. L. Muratikov[3], B. N. Semenov[1,2], D. A. Indeitsev[1,2], D. S. Vavilov[1,2]

[1] *Institute of Problems in Mechanical Engineering of Russian Academy of Sciences, Saint-Petersburg, Russian Federation*
[2] *Saint-Petersburg State University, Saint-Petersburg, Russian Federation*
[3] *Ioffe Institute, Saint-Petersburg, Russian Federation*

Received November 28, 2018

Within the framework of the one-temperature model of thermoelasticity, the analysis of the effect of electon localization processes on the thermoelastic response of conductors under pulsed laser irradiation is performed. It is shown that the localization of electrons can lead to a significant tightening of the deformation processes in conductors compared with the processes that develop according to the usual thermoelastic mechanism.

Keywords: thermoelasticity, acoustics, conductors, lasers, electron localization.