

**ЭФФЕКТИВНЫЕ ЧАСТОТЫ ЭЛЕКТРОННЫХ S-S- И S-D-СТОЛКНОВЕНИЙ
В НИКЕЛЕ ПРИ ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ ЭЛЕКТРОНОВ, ВЫЗВАННЫХ
ДЕЙСТВИЕМ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ**

***Петров Ю.В.¹, Иногамов Н.А.¹, Мигдал К.П.²**

¹*ИТФ им. Л.Д. Ландау РАН*

²*Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н.Л. Духова*

***uvp49@mail.ru**

Вычисляются эффективные частоты межэлектронных s-s- и s-d-столкновений в переходном металле (никель), в котором при действии фемтосекундных лазерных импульсов оптического диапазона частот происходит нагрев как s-, так и d-электронов. Показан большой вклад s-d-рассеяния в общую частоту столкновений s-электронов с другими электронами в металле при умеренных (до 1 эВ) электронных температурах.

Ключевые слова: фемтосекундные лазерные импульсы, электрон-электронные столкновения, переходные металлы.

**EFFECTIVE FREQUENCIES OF S-S AND S-D ELECTRON COLLISIONS
IN NICKEL AT HIGH TEMPERATURES OF ELECTRONS CAUSED
BY THE ACTION OF FEMTOSECOND LASER PULSES**

Petrov Y.V.¹, Inogamov N.A.¹, Migdal K.P.²

¹*Landau ITP RAS*

²*VNIIA*

Effective frequencies of s-s and s-d electron collisions are calculated for the transition metal (nickel) with electrons heated by the femtosecond laser pulses of the optical frequency diapazone. It is shown that s-d scattering contributes to a great extent to the frequency of collisions of s-electrons with other electrons in the transition metal at moderate electron temperatures (up to 1 eV).

Keywords: femtosecond laser pulses, electron-electron collisions, transition metals.

Введение. При действии фемтосекундных лазерных импульсов на металлы в течение времени, превышающего длительность импульса, возникает уникальное состояние, характеризующееся большой разницей температур электронов зоны проводимости и кристаллической решетки. Энергия лазерного импульса поглощается электронами и, вследствие большой разницы в массах электронов и ионов, сравнительно медленно передается в кристаллическую решетку. Небольшая величина электронной теплоемкости при низких температурах приводит к существенному повышению температуры электронов сразу после окончания действия импульса лазера в поверхностном слое мишени толщиной порядка длины проникновения лазерного излучения. Затем тепловая энергия, полученная электронной подсистемой металла, распространяется внутрь мишени за счет теплопроводности, преимущественно электронной, и обмена энергией между электронами и ионами. Это приводит в итоге к появлению в мишени нагретого слоя вещества. Толщина этого слоя повышенной температуры и давления и дальнейшая динамика его расширения вплоть до абляции существенно зависят от величины электронной теплопроводности. Для простых металлов (в которых при воздействии фемтосекундных лазеров оптического диапазона частот происходит возбуждение только s- и p-электронов), таких, как алюминий, коэффициент теплопроводности с учетом как электрон-ионного, так и электрон-электронного рассеяния был вычислен в широком интервале электронных температур в работе [1]. В переходных металлах, в частности, в никеле, который мы здесь рассматриваем, имеются две группы электронов, которые влияют на электронную теплопроводность. Первая из них – это s-электроны с малой эффективной массой, они обладают высокой подвижностью и дают основной вклад в теплопередачу. Другая группа электронов – это d-электроны с большей эффективной массой и, как следствие, с меньшей подвижностью и меньшим вкладом в передачу тепла. Но на d-электронах происходит эффективное рассеяние s-электронов в дополнение к s-s-рас-

сеянию. Мы вычислим эффективные частоты s-s- и s-d-рассеяния в никеле и определяемый ими коэффициент электронной теплопроводности в широком диапазоне температур электронов, характерном для взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов умеренной интенсивности с поверхностной плотностью энергии до 1 Дж/см^2 , когда существенно термическое возбуждение как s-, так и d-электронов.

Эффективные частоты электрон-электронных столкновений. Рассмотрим столкновение s-электрона, имеющего импульс \mathbf{p} , с электроном, имеющим импульс \mathbf{p}' :

$$\mathbf{p} + \mathbf{p}' \rightarrow (\mathbf{p} + \mathbf{q}) + (\mathbf{p}' - \mathbf{q}),$$

где \mathbf{q} – переданный импульс. Частота столкновений s-электрона с импульсом \mathbf{p} с другими электронами может быть записана как

$$\nu(\mathbf{p}) = \frac{2\pi}{\hbar} \int |U_{\mathbf{q}}|^2 \frac{d^3 q}{(2\pi\hbar)^3} \int \frac{d^3 p'}{(2\pi\hbar)^3} \Phi(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}) \times \delta[\varepsilon(\mathbf{p}) + \varepsilon'(\mathbf{p}') - \varepsilon(\mathbf{p} + \mathbf{q}) - \varepsilon'(\mathbf{p}' - \mathbf{q})].$$

Здесь $U_{\mathbf{q}}$ – матричный элемент электрон-электронного взаимодействия, в качестве которого рассматриваем экранированное кулоновское взаимодействие

$$U(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{e^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} e^{-\kappa|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|}$$

с длиной экранирования $\lambda(T_e) = \frac{1}{\kappa(T_e)}$.

Тогда
$$U_{\mathbf{q}} = \frac{4\pi e^2}{q^2 / \hbar^2 + \kappa^2},$$

и
$$\nu(\mathbf{p}) = \frac{2\pi}{\hbar} \int \left(\frac{4\pi e^2}{q^2 / \hbar^2 + \kappa^2} \right)^2 \frac{d^3 q}{(2\pi\hbar)^3} \int \frac{d^3 p'}{(2\pi\hbar)^3} \Phi(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}) \times \delta[\varepsilon(\mathbf{p}) + \varepsilon'(\mathbf{p}') - \varepsilon(\mathbf{p} + \mathbf{q}) - \varepsilon'(\mathbf{p}' - \mathbf{q})] \quad (1)$$

Статистический фактор $\Phi(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q})$ в выражении (1) определяется энергетическими зонами тех электронов, которые участвуют в рассеянии.

Для процесса s-s рассеяния, детально рассмотренного в [1], статистический фактор имеет вид:

$$\Phi(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}) = f_s(\mathbf{p}') [1 - f_s(\mathbf{p} + \mathbf{q})] [1 - f_s(\mathbf{p}' - \mathbf{q})] + f_s(\mathbf{p} + \mathbf{q}) f_s(\mathbf{p}' - \mathbf{q}) [1 - f_s(\mathbf{p}')],$$

где f_s – фермиевская функция распределения s-электронов. На электронной плотности состояний никеля (рис. 1) четко выделяются состояния, принадлежащие как s- и d-зонам. Мы рассмотрим обе эти зоны в параболическом приближении с эффективными массами электронов соответственно $m_s = 1.1 m$ и $m_d = 7.7 m$ (m – масса свободного электрона).

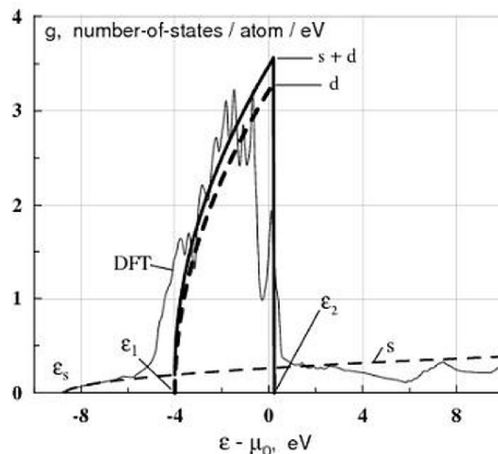


Рис. 1. Плотность состояний никеля, рассчитанная методом функционала плотности, и ее двухпараболическая аппроксимация (μ_0 – химический потенциал электронов при нулевой температуре)

Рассмотрим s-d-рассеяние как процесс $sd \rightarrow sd$ и передачу тепла, связанную с таким процессом. Энергии электронов в s- и d-зонах в приближении эффективных масс могут быть записаны в виде:

$$\varepsilon(\mathbf{p}) = \varepsilon_s + \frac{p^2}{2m_s}, \quad \varepsilon'(\mathbf{p}') = \varepsilon_1 + \frac{p'^2}{2m_d},$$

где ε_s – дно s-зоны, ε_1 – дно d-зоны с потолком, равным ε_2 . Статистический фактор в этом случае есть

$$\Phi(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}) = f_d(\mathbf{p}') [1 - f_s(\mathbf{p} + \mathbf{q})] [1 - f_d(\mathbf{p}' - \mathbf{q})] + f_s(\mathbf{p} + \mathbf{q}) f_d(\mathbf{p}' - \mathbf{q}) [1 - f_d(\mathbf{p}')],$$

f_d – фермиевская функция распределения d-электронов. Вследствие сохранения энергии при электрон-электронном рассеянии имеем:

$$\varepsilon_s + \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{q})^2}{2m_s} + \varepsilon_1 + \frac{(\mathbf{p}' - \mathbf{q})^2}{2m_d} = \varepsilon_s + \frac{p^2}{2m_s} + \varepsilon_1 + \frac{p'^2}{2m_d}.$$

Введем обозначения:

$$\alpha = \frac{p^2}{2m_s} - \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{q})^2}{2m_s}; \quad \beta = \frac{(\mathbf{p}' - \mathbf{q})^2}{2m_d} - \frac{p'^2}{2m_d}; \quad \varepsilon = \frac{p^2}{2m_s}; \quad \varepsilon' = \frac{p'^2}{2m_d}.$$

Тогда:

$$\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{q})^2}{2m_s} = \varepsilon - \alpha, \quad \frac{(\mathbf{p}' - \mathbf{q})^2}{2m_d} = \varepsilon' + \beta,$$

и статистический фактор принимает вид

$$\Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \beta) = f_d(\varepsilon') [1 - f_s(\varepsilon - \alpha)] [1 - f_d(\varepsilon' + \beta)] + f_s(\varepsilon - \alpha) f_d(\varepsilon' + \beta) [1 - f_d(\varepsilon')].$$

Здесь при температуре электронов T , согласно предположению о локальном термодинамическом равновесии внутри электронной подсистемы,

$$f_s(\varepsilon) = \frac{1}{e^{\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \mu}{kT}} + 1}, \quad f_d(\varepsilon) = \frac{1}{e^{\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon - \mu}{kT}} + 1},$$

(k – постоянная Больцмана, $\mu(T)$ – химический потенциал, общий для s- и d-электронов). Тогда:

$$\Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \beta) = \frac{\exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' - \mu}{kT}\right)}{\exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \alpha - \mu}{kT}\right) + 1} \cdot \frac{\exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon + \beta - \alpha - \mu}{kT}\right) + 1}{\left(\exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' + \beta - \mu}{kT}\right) + 1\right) \left(\exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' - \mu}{kT}\right) + 1\right)}.$$

С введенными обозначениями δ -функция в (1), отвечающая за сохранение энергии, приобретает вид $\delta(\alpha - \beta)$, и частота столкновений s-электрона, имеющего импульс \mathbf{p} , с d-электронами, может быть записана как

$$v(\mathbf{p}) = v(p) = \frac{2\pi}{\hbar} \int \left(\frac{4\pi e^2}{q^2 / \hbar^2 + \kappa^2} \right)^2 \frac{d^3 q}{(2\pi\hbar)^3} \int \frac{d^3 p'}{(2\pi\hbar)^3} \Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \beta) \delta(\alpha - \beta).$$

Вводя полярный θ и азимутальный φ углы для вектора \mathbf{q} (θ – угол между \mathbf{p} и \mathbf{q}), мы можем написать $d^3 q = 2\pi q^2 dq dt$, где $t = -\cos \theta$, а по азимутальному углу φ проведено интегрирование от 0 до 2π . Учитывая, что

$$\alpha = \frac{p^2}{2m_s} - \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{q})^2}{2m_s} = \frac{2pqt - q^2}{2m_s},$$

имеем: $dt = \frac{m_s}{pq} d\alpha$. Для заданного \mathbf{q} введем полярный и азимутальный углы θ' и φ' для вектора

\mathbf{p}' (θ' – угол между \mathbf{p}' и \mathbf{q}). Тогда, $d^3 p' = 2\pi p'^2 dp' dt'$ (снова в $d^3 p'$ произведено интегрирование по φ' от 0 до 2π). Используя переменную $t' = -\cos \theta'$, мы можем написать для β :

$$\beta = \frac{(\mathbf{p}' - \mathbf{q})^2}{2m_d} - \frac{p'^2}{2m_d} = \frac{2p'qt' + q^2}{2m_d},$$

откуда $dt' = \frac{m_d}{p'q} d\beta$. Тогда мы получаем:

$$\begin{aligned} & \frac{d^3q}{(2\pi\hbar)^3} \frac{2d^3p'}{(2\pi\hbar)^3} \Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \beta) \delta(\alpha - \beta) = \\ & \frac{dq}{(2\pi\hbar)^3} \frac{2dp'}{(2\pi\hbar)^3} \frac{2\pi m_s}{p} 2\pi m_d p' \Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \beta) \delta(\alpha - \beta) d\alpha d\beta. \end{aligned} \quad (2)$$

После интегрирования по β из-за наличия δ -функции это выражение трансформируется в

$$\frac{dq}{(2\pi\hbar)^3} \frac{2dp'}{(2\pi\hbar)^3} \frac{2\pi m_s}{p} 2\pi m_d p' \Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \alpha) d\alpha,$$

где статистический фактор имеет вид

$$\Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \alpha) = \frac{\exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' - \mu}{kT}\right)}{\exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' - \mu}{kT}\right) + 1} \cdot \frac{\exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \mu}{kT}\right) + 1}{\left(\exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \alpha - \mu}{kT}\right) + 1\right) \left(\exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' + \alpha - \mu}{kT}\right) + 1\right)}.$$

Вычисляя интеграл от него по α , получаем функцию

$$\tilde{\Phi}(\alpha', \alpha'') = \int_{\alpha'}^{\alpha''} \Phi(\alpha, \alpha) d\alpha = \frac{\exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \mu}{kT}\right) + 1}{\exp\left(\frac{\mu - \varepsilon_1 - \varepsilon'}{kT}\right) + 1} \cdot \frac{kT}{\exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \mu}{kT}\right) \exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' - \mu}{kT}\right) - 1} \times \ln \frac{\exp\left(\frac{\alpha}{kT}\right) + \exp\left(\frac{\mu - \varepsilon_1 - \varepsilon'}{kT}\right)}{\exp\left(\frac{\alpha}{kT}\right) + \exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \mu}{kT}\right)} \Bigg|_{\alpha'}^{\alpha''}$$

от пределов интегрирования $\alpha'(p, p', q)$ и $\alpha''(p, p', q)$, определяемых из ограничений, накладываемых sd \rightarrow sd-рассеянием и условием отличия от нуля результата интегрирования по β выражения (2), содержащего δ -функцию. sd \rightarrow sd-рассеяние накладывает условие

$$\varepsilon_1 \leq \varepsilon_1 + \frac{(\mathbf{p}' - \mathbf{q})^2}{2m_d} \leq \varepsilon_2$$

или

$$\beta = \frac{p'^2 + 2p'qt' + q^2}{2m_d} \leq \varepsilon_2 - \varepsilon_1.$$

Обозначим $p_d = \sqrt{2m_d(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}$ граничный импульс d -электронов. Тогда $p \leq p_d$ и $p'^2 + 2p'qt' + q^2 \leq p_d^2$. Отсюда следует $t' \leq t_0(p', q) = \frac{p_d^2 - p'^2 - q^2}{2p'q}$. В зависимости от положения

точки t_0 по отношению к интервалу $[-1, 1]$ возникают два случая. В случае 1 $t_0 \geq 1$. В этом случае интегрирование по t' ведется по всему интервалу $[-1, 1]$. В случае 2 $-1 \leq t_0 \leq 1$, и интегрирование по t' проводится в пределах $-1 \leq t' \leq t_0$. Рассматривая теперь все варианты интегрирования по β , выражения (2) с функцией $\delta(\alpha - \beta)$, дающие ненулевой вклад, мы получаем различные области двумерного интегрирования в плоскости переменных $p' - q$ для заданного импульса электрона p , рассматриваемого как параметр. Выполняя в этих областях численное двумерное интегрирование по p' и q , мы получаем частоту столкновений $\nu(p)$ s-электрона с заданным импульсом p с d-электронами в процессе sd \rightarrow sd.

Тогда можно определить коэффициент электронной теплопроводности, обусловленный s-d-рассеянием электронов:

$$\kappa_{sd}(T) = \frac{k}{3} \int (\varepsilon - \mu) \left(-\frac{\partial f_s}{\partial \varepsilon}(\varepsilon) \right) \left(\frac{\partial \mu}{\partial T} + \frac{\varepsilon - \mu}{T} \right) \frac{v_s^2(p)}{v(p)} \frac{p^2 dp}{\pi^2 \hbar^3}. \quad (3)$$

Здесь $v_s(p)$ скорость s-электрона. Мы используем вычисленный с помощью выражения (3) коэффициент электронной теплопроводности за счет s-d-рассеяния, чтобы определить среднюю частоту s-d-столкновений $\bar{v}_{sd}(T)$, определяющую этот коэффициент в Друде-соотношении:

$$\kappa_{sd}(T) = \frac{1}{3} \frac{C_s(T) \bar{v}_s^2}{\bar{v}_{sd}(T)},$$

откуда зависящая от температуры электронов средняя частота s-d-электронных столкновений

$$\bar{v}_{sd}(T) = \frac{1}{3} \frac{C_s(T) \bar{v}_s^2}{\kappa_{sd}(T)}. \quad (4)$$

Результаты и обсуждение. Вычисленный коэффициент электронной теплопроводности никеля, обусловленный как s-s-, так и s-d-электронным рассеянием, как функция температуры электронов показан на рис. 2 в сравнении с электронным коэффициентом теплопроводности алюминия, в котором отсутствует возбуждение d-электронов.

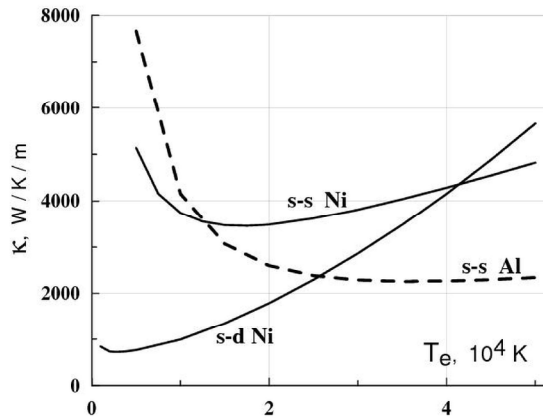


Рис. 2. Коэффициент электронной теплопроводности, обусловленный s-s- и s-d-столкновениями в никеле (переходный металл), в сравнении с коэффициентом электронной теплопроводности алюминия (простой металл)

Средние частоты s-s- и s-d-электронных столкновений, полученные с помощью соотношения (4), как функции электронной температуры, приведены на рис. 3 для никеля и для алюминия.

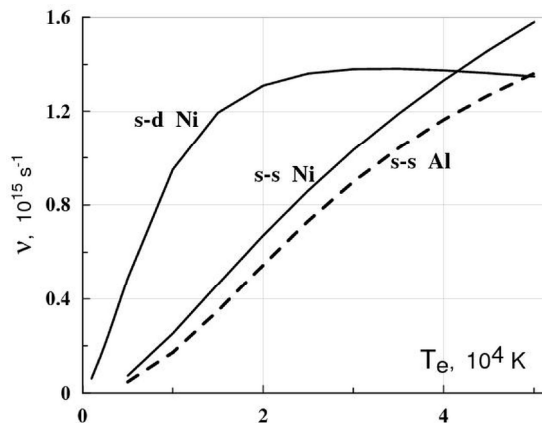


Рис. 3. Эффективные частоты электронных s-s- и s-d-столкновений в никеле в зависимости от температуры электронов в сравнении с эффективной частотой электрон-электронных столкновений в алюминии

Как и для алюминия, частота s-s-столкновений в никеле растет с увеличением температуры электронов. В то же время у частоты s-d-столкновений как функции электронной температуры наблюдается немонотонное поведение.

Суммарная частота электрон-электронных столкновений s-электронов (ν_{se}) в переходном металле никеле значительно превосходит таковую в простом металле алюминии. В никеле при температурах электронов $T < 1$ эВ частота s-d-столкновений существенно больше частоты s-s-рассеяния. Частоты электрон-электронных столкновений вместе с частотами электрон-ионных столкновений определяют суммарную электронную релаксацию, ответственную за электронную теплопроводность [2–6].

Работа поддержана Программой РАН «Вещество при высоких плотностях энергии» и Российским фондом фундаментальных исследований, проект 13-02-01078.

Библиография

1. Иногамов Н.А., Петров Ю.В. Теплопроводность металлов с горячими электронами // ЖЭТФ. 2010. Т. 137. Вып. 3. С. 505–529.
2. Eidmann K., Meyer-ter-Vehn J., Schlegel T., Hüller S. Hydrodynamic simulation of subpicosecond laser interaction with solid-density matter // Phys. Rev. E. 2000. V. 62. P. 1202–1214.
3. Fisher D., Fraenkel M., Henis Z., Moshe E., Elieser S. Interband and intraband (Drude) contributions to femtosecond laser absorption in aluminum // Phys. Rev. E. 2001. V. 65. P. 016409 (1–8).
4. Vidal F., Johnston T.W., Laville S., Barthélemy O., Chaker M., Le Drogoff B., Margot J., Sabsabi M. Critical-point phase separation in laser ablation of conductors // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 86. P. 2573–2576.
5. Агранат М.Б., Андреев Н.Е., Ашитков С.И., Вейсман М.Е., Левашов П.Р., Овчинников А.В., Ситников Д.С., Фортгов В.Е., Хищенко К.В. Определение транспортных и оптических свойств неидеальной плазмы твердотельной плотности при фемтосекундном лазерном воздействии // Письма в ЖЭТФ. Т.85. Вып. 6. С. 328–333.
6. Colombier J.P., Combis P., Audouard E., Stoian R. Transient optical response of ultrafast nonequilibrium excited metals: effect of electron-electron contribution to collisional absorption // Phys. Rev. E. 2008. V. 77. P. 036409 (1–12).