

ТЕРМОМЕХАНИКА ТОКОПРОВОДЯЩИХ МАТЕРИАЛОВ ПРИ ЛАЗЕРНОМ ВОЗДЕЙСТВИИ

**Н. Ф. Морозов^{1,2}, Д. А. Индейцев^{1,2,3}, К. Л. Муратиков⁵,
Б. Н. Семенов^{1,2}, Д. С. Вавилов^{1,4}, А. А. Кудрявцев³**

¹Институт проблем машиноведения РАН, ²Санкт-Петербургский государственный университет, ³Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, ⁴Военно-космическая академия им. А. Ф. Можайского, ⁵Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН
Санкт-Петербург, Россия

n.morozov@spbu.ru, dmitry.indeitsev@gmail.com, klm.holo@mail.ioffe.ru,
semenov@bs1892.spb.edu, londr@yandex.ru, kudryavtsevaa@spbstu.ru

Настоящая работа посвящена построению новой модели, описывающей динамическое поведение электронного газа в проводящих материалах и его взаимодействие с кристаллической решеткой при лазерном воздействии. Для описания физических процессов и объяснения новых динамических термоупругих эффектов предлагается двухкомпонентная модель. Модель описывает сплошную среду, состоящую из двух взаимопроникающих континуумов. Электронный газ состоит не только из свободных электронов, но и связанных, могущих переходить в активные состояния, из одного локализованного состояния в другое, осуществляя «прыжковую диффузию», что характерно для проводников с дефектами в кристаллической решетке. Как показано в дальнейшем, именно эти электроны и осуществляют существенную динамическую зависимость параметра коэффициента линейного теплового расширения от параметров структуры материала, включая предварительно напряженное состояние.

К числу первых теоретических работ, касающихся изучения генерации упругих деформаций и волн в твердых телах по термоупругому механизму, можно отнести работы Даниловской [1, 2]. В этих работах рассмотрена связанная задача термоупругости, и в линейном приближении были получены решения, описывающие временное и пространственное развитие деформаций в твердотельных объектах при импульсном лазерном воздействии. Подход, разработанный в работах [1, 2], основывается на макроскопическом рассмотрении тепловых, термоупругих и упругих процессов в материалах. Считается, что он одинаково применим как к диэлектрическим, так и к проводящим материалам. Сравнение теоретических результатов, полученных в рамках такого подхода, с имеющимися к настоящему моменту экспериментальными данными по генерации акустических сигналов лазерным излучением показывает, что он неплохо работает в случае диэлектрических материалов.

Что касается проводящих материалов, то проведенные в последнее время экспериментальные исследования [3, 4] показывают, что поведение акустического отклика от реальных металлов на импульсное лазерное воздействие наносекундной длительности носит более сложный характер, чем теоретически предсказываемый в [1, 2]. Так, для металлов после начала воздействия лазерного импульса действительно наблюдается поведение акустического сигнала, близкое к предсказываемому в указанных работах. Однако на последующих этапах в металлах наблюдается сравнительно медленный рост сигнала (в микросекундном диапазоне), который не описывается разработанной теорией. В связи с наблюдаемым расхождением экспериментальных и теоретических результатов для металлов целью данной работы является выяснение его возможной причины. В качестве фактора, влияющего на акустический отклик металлических образцов при импульсном лазерном воздействии, в данной работе предлагается учесть присутствие в них дефектов различной природы. Известно, что в дефектных проводящих материалах наряду со свободными электронами могут присутствовать и локализованные электроны вблизи дефектов (андерсоновская локализация) [5]. Подобная ситуация хорошо изучена для полупроводников, в которых продемонстрировано присутствие так называемой прыжковой проводимости. В выполненных недавно исследованиях электропроводности пленок металлов было обнаружено, что для пленок с сильно разупорядоченной структурой также характерны переходы электронов из одного локализованного состояния в другое, сопровождающиеся определенной локальной перестройкой решетки [6]. В реальных металлах переход локализованных электронов из связанного состояния в свободное может происходить по нескольким механизмам. Например, он может осуществляться активационным образом при повышении температуры дефекта в результате поглощения энергии лазерного импульса. В этом случае некоторые захваченные электроны могут получить энергию, достаточную для переходов из локализованного состояния в состояния вблизи уровня Ферми металла. Свободные электроны при лазерном воздействии также могут появляться в результате разрыва связей между атомами решетки вблизи концентраторов напряжений, концов трещин, границ доменов и т. п. Появление дополнительных свободных электронов приводит к повышению давления в электронной подсистеме. Поскольку структура металлов состоит из решеточной и электронной подсистем, то изменение давления в электронной подсистеме необходимо учитывать при расчете поведения его решетки в процессах генерации и распространения акустических сигналов. Основные уравнения двухкомпонентной модели металла имеют вид [7]:

$$\begin{aligned} -\nabla P_e &= \rho_e \dot{\mathbf{v}}_e + \mathbf{Q}_{ei} \\ \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma}_i &= \rho_i \dot{\mathbf{v}}_i + \mathbf{Q}_{ie}. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь P_e и σ_i — давление электронного газа и тензор напряжения Коши решетки, $Q_{ei} = -Q_{ie}$ — внутренние силы воздействия электронного газа и решетки, ρ_e, ρ_i — плотность электронного газа и материала решетки. В соответствии с традиционной термомеханикой связь напряжений и деформаций определяется законом Дюгамеля — Неймана, обобщающим закон Гука на случай термоупругости

$$\sigma_i = 2\mu \boldsymbol{\varepsilon} + (\lambda I_1(\boldsymbol{\varepsilon}) - (3\lambda + 2\mu)\alpha_\theta \tilde{\theta}) \mathbf{E}, \quad (2)$$

где $\boldsymbol{\varepsilon}$ — тензор деформации, $I_1(\boldsymbol{\varepsilon})$ — его первый инвариант, λ, μ — коэффициенты Ламе, α_θ — коэффициент температурного линейного расширения, $\tilde{\theta} = \theta_i - \theta_0$ — изменение температуры кристаллической решетки относительно исходного равновесного состояния, \mathbf{E} — единичный тензор.

Классическая термоупругость учитывает отличие динамического отклика разных материалов лишь через значения физических параметров, входящих в выражение (2). Между тем во многих экспериментальных работах [3, 4, 8] отмечается ограниченность закона Дюгамеля — Неймана, связанная с динамикой внутренних степеней свободы. Неучет их влияния в модели может привести к существенным отличиям в поведении материала от теоретических предсказаний. Для более детального исследования этого вопроса несколько преобразуем систему уравнений (1), сложив первое и второе уравнения. В результате получим уравнение

$$\frac{\partial(\rho_i \mathbf{v}_i + \rho_e \mathbf{v}_i)}{\partial t} = \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma}_m - \frac{m}{e} \frac{\partial \mathbf{j}}{\partial t}, \quad (3)$$

где общий тензор напряжений $\boldsymbol{\sigma}_m = \boldsymbol{\sigma}_i - P_e \mathbf{E}$ складывается из тензора решетки, определяемого законом Дюгамеля — Неймана, и давления электронного газа, $\mathbf{j} = en_e \mathbf{v}_r$, e — абсолютная величина заряда электрона, m — его масса, \mathbf{v}_r — скорость движения электронов относительно решетки, n_e — концентрация электронов. Уравнение движения (3) в представленной форме совпадает с уравнением движения теории упругости металлов работы [9]. В соответствии с известными результатами число свободных электронов в металле, подверженных тепловому возбуждению, определяется соотношением $n_e^f = \frac{k\theta_e}{\varepsilon_F} n_e$, где ε_F — энергия Ферми, k — постоянная Больцмана, θ_e — температура электронного газа. При высоких температурах $k\theta_e \approx \varepsilon_F$ оно может быть достаточно большим и его необходимо учитывать при расчете деформаций решетки. Подобная ситуация реализуется при воздействии на металл коротких и мощных лазерных импульсов и получила название электронного взрыва. Его влияние на термоакустический сигнал в проводнике определяется разностью температур электронного газа и решетки. Подробный анализ этого влияния представлен в работах [10, 11]. В данной работе мы ограничимся рассмотрением ситуации

лазерного воздействия на металл, приводящего к относительно небольшому повышению температуры, при котором $k\theta_e \ll \varepsilon_F$, и в дальнейшем везде полагаем $\theta_e = \theta_i = \theta$. При таком источнике частоты рассматриваемых процессов находятся гораздо ниже плазменной (ленгмюровской) частоты, и поэтому допустимо считать, что выполняется условие электронейтральности $n_e \approx n_i$, где n_i — концентрация ионов, откуда следует равенство деформаций решетки и электронного газа. Тогда в уравнении (3) можно пренебречь слагаемым с током по сравнению со слагаемыми, стоящими в левой части. Кроме того, в силу различия плотностей решетки и электронов в левой части уравнения движения (3) можно пренебречь слагаемым с электронной плотностью и представить его в виде

$$\rho_i \frac{\partial v_i}{\partial t} = \nabla \cdot \sigma_m. \quad (4)$$

В соответствии с уравнением (4) для определения деформаций решетки необходимо знать распределение температуры и давления электронного газа в металле. В приближении свободных электронов для последнего справедливо следующее представление:

$$P_e = \frac{2}{5} n_e \varepsilon_F + \frac{\pi^2}{6} n_e \varepsilon_F \left(\frac{k\theta_e}{\varepsilon_F} \right)^2. \quad (5)$$

В рамках линейной модели изменение давления может быть представлено в виде

$$\tilde{P}_e = a \tilde{n}_e + b \tilde{\theta}_e, \quad (6)$$

где $\tilde{\theta}_e = \theta_e - \theta_0$ и $\tilde{n}_e = n_e - n_0$ — отклонения соответствующих величин от состояния равновесия, $a = 2/5 \cdot \varepsilon_F \left(1 + \frac{5\pi^2}{12} \left(\frac{k\theta_0}{\varepsilon_F} \right)^2 \right)$,

$b = \frac{\pi^2}{3} \frac{n_0 \varepsilon_F}{\theta_0} \left(\frac{k\theta_0}{\varepsilon_F} \right)^2$. Тогда общее реологическое уравнение для среды с учетом равенства температур электронного газа и решетки запишется в виде

$$\sigma_m = 2\mu \varepsilon + \left((\lambda + a n_0) I_1(\varepsilon) - ((3\lambda + 2\mu)\alpha_\theta + b)\tilde{\theta} \right) E, \quad (7)$$

т. е. в идеальном кристалле закон Дюгамеля—Неймана сохраняет свою форму с незначительными поправками на упругий модуль и коэффициент теплового линейного расширения.

В неидеальном кристалле наличие дефектов различной природы приводит к тому, что электроны могут находиться не только в свободном, но и в связанном (локализованном) состоянии, чему посвящены работы [6, 12].

Переход из одного состояния в другое, осуществляемый в результате действия температурных и деформационных полей, может стать причиной изменения давления в электронном газе. Система уравнений, описывающая баланс числа свободных и локализованных электронов, имеет вид

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla \cdot (n_e \mathbf{v}_e) = -\alpha(I_1(\boldsymbol{\varepsilon}), \theta)n_e + \beta(I_1(\boldsymbol{\varepsilon}), \theta)n_{es}, \quad (8)$$

$$\frac{\partial n_{es}}{\partial t} + \nabla \cdot (n_{es} \mathbf{v}_i) = \alpha(I_1(\boldsymbol{\varepsilon}), \theta)n_e - \beta(I_1(\boldsymbol{\varepsilon}), \theta)n_{es},$$

где n_{es} — концентрация локализованных электронов. Через α и β обозначены функции, определяющие интенсивность перехода электронов из одного состояния в другое. В общем случае они зависят от температуры и шаровой части тензора деформации. Наличие зон с локализованными электронами оказывает значительное влияние на форму акустического сигнала. Покажем это на примере динамической задачи термоупругости, полагая, что они сосредоточены вблизи поверхности образца, где происходит нарушение периодической структуры кристаллической решетки. Рассмотрим одномерную задачу о нагреве упругого полупространства лазерным импульсом длительностью t_{imp} и амплитудой J_0 . Если считать, что температура удовлетворяет классическому уравнению теплопроводности на основе закона Фурье, то поток тепла на границе задается в виде

$$\chi \frac{\partial \theta}{\partial x} \Big|_{x=0} = J_0(H(t) - H(t - t_{imp})), \quad (9)$$

где через χ обозначен коэффициент теплопроводности, $H(t)$ — функция Хевисайда. С учетом сделанных предположений динамическое уравнение двухкомпонентной системы решетка — электронный газ при решении задачи о нагреве границы упругого полупространства имеет такой же вид, что и в классической проблеме термоупругости [1, 2],

$$\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial x^2} - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial t^2} = \alpha_t \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2}, \quad (10)$$

и единственное отличие заключается в граничном условии на свободной поверхности

$$\sigma \Big|_{x=0} = P_e, \quad (11)$$

которое в силу соотношений (2) и (5) записывается в виде

$$\varepsilon \Big|_{x=0} = \alpha_t \tilde{\theta} + \frac{2\tilde{n}_e \varepsilon_F}{5E}. \quad (12)$$

При этом в выражении (5) не учитывается второе слагаемое ввиду малости параметра $\frac{k\theta_e}{\varepsilon_F}$. Здесь c_0 — скорость звука, $E = \lambda + 2\mu$, $\alpha_t = \frac{3\lambda + 2\mu}{\lambda + 2\mu}$.

Далее принимаем, что функция α в уравнениях (8) является постоянной величиной, а β представляет собой монотонно возрастающую функцию от деформации. Такое представление обусловлено предположением, что растягивающие деформации, смещая энергетические уровни локализованных электронов, способствуют процессу их освобождения. В исходном равновесном состоянии при температуре до момента приложения внешнего воздействия концентрации свободных и локализованных электронов соответственно равны

$$n_{e0} = \frac{\beta(\varepsilon_0)N_0}{\alpha + \beta(\varepsilon_0)}, \quad n_{es0} = \frac{\alpha N_0}{\alpha + \beta(\varepsilon_0)}. \quad (13)$$

Через ε_0 здесь обозначена предварительная деформация образца. Пренебрегая дивергентными слагаемыми, возмущенную относительно стационарного режима систему (8) с учетом условий равновесия (13) в линейном приближении можно представить в виде одного уравнения

$$\frac{\partial \tilde{n}_e}{\partial t} + \frac{\tilde{n}_e}{\tau} = \beta_1 n_{es0} \varepsilon, \quad (14)$$

где $\tau = \frac{1}{\alpha + \beta_0}$, $\beta_0 = \beta(\varepsilon_0)$ и $\beta_1 = \frac{d\beta}{d\varepsilon}(\varepsilon_0)$. После подстановки деформации на границе (12) и введения безразмерных величин $\bar{t} = \frac{t}{\tau}$, $\bar{n}_e = \frac{\tilde{n}_e}{n_{es0}}$, $\bar{\theta} = \frac{\theta}{\theta_0}$ уравнение (14) принимает вид

$$\dot{\bar{n}}_e + \bar{n}_e(1 - \gamma) = \tau \beta_1 \alpha_t \theta_0 \bar{\theta}, \quad (15)$$

откуда следует, что

$$\bar{n}_e = B \int_0^{\bar{t}} \bar{\theta}(s) e^{-(1-\gamma)(\bar{t}-s)} ds, \quad (16)$$

где $B = \tau \beta_1 \alpha_t \theta_0$. Время эволюционного процесса, описываемого выражением (16), определяется параметром $\gamma = \frac{2\beta_1 n_{es0} \tau \varepsilon_F}{5E}$. Устойчивость решения обеспечивается выполнением неравенства $\varepsilon_0 < \frac{\beta_0}{\beta_1 \tau \alpha}$, которое нетрудно получить, исходя из равенства напряжений электронного газа и решетки в равновесном состоянии. Графики характерных кривых при $t_{\text{имп}} = 1 \cdot 10^{-8}$ с и $\tau = 1 \cdot 10^{-6}$ с приведены на рис. 1. Их форма качественно совпадает с данными эксперимента по определению термоакустического импульса в образцах из проводящих материалов [3, 4]. Так

как в параметры γ и B входит значение функции β и ее производной в точке ε_0 , то полученный результат означает, что как амплитуда, так и длительность акустического сигнала зависят от предварительной деформации, иными словами, проявляется эффект памяти: динамический отклик материала «помнит» исходную конфигурацию, что отмечается в экспериментальной работе, посвященной исследованию возможности детектирования поверхностных технологических напряжений методами фотоакустики [13]. Представленная работа показывает необходимость учета

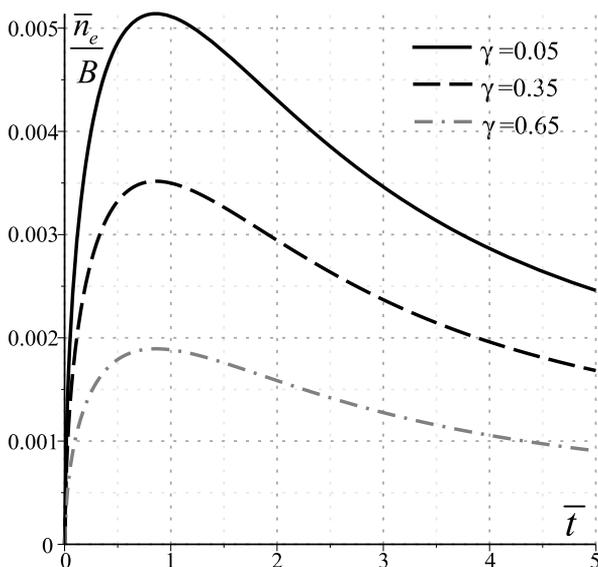


Рис. 1. Изменение концентрации свободных электронов

электронного газа при анализе акустического импульса в проводниках. При расчете его давления использовалась модель свободных электронов. Изменение их концентрации связано с процессом освобождения электронов из локализованных состояний при лазерном воздействии, наличие которых обусловлено искажением периодической структуры кристаллической решетки в поверхностной области. Эксперимент показывает, что характерные времена релаксации этих электронов сопоставимы с временами длинноволнового акустического спектра колебаний. Анализ решения нестационарной задачи термоупругости качественно хорошо описал экспериментальные факты о поведении акустических сигналов в проводниках, а также влияние предварительной деформации на изменение формы сигнала в зависимости от нового операторного вида коэффициента линейного теплового расширения.

Литература

1. Даниловская В. И. Температурные напряжения в упругом полупространстве, возникающие вследствие внезапного нагрева его границы // Прикладная математика и механика // Прикладная математика и механика. 1950. Т. 14. № 3. С. 316–318.
2. Даниловская В. И. Об одной динамической задаче термоупругости // Прикладная математика и механика. 1952. Т. 16. № 3. С. 342–344.
3. Вовненко Н. В., Зимин Б. А., Судьенков Ю. В. Особенности формирования динамических напряжений в тепло- и нетеплопроводящих материалах при субмикросекундных длительностях нагрева // Вестник Санкт-Петербургского университета. Серия 1. Математика. Механика. Астрономия. 2008. Т. 16. № 4.
4. Вовненко Н. В., Зимин Б. А., Судьенков Ю. В. Экспериментальные исследования термоупругих напряжений в тепло- и нетеплопроводящих твердых телах при субмикросекундных длительностях лазерного нагрева // Журнал технической физики. 2011. Т. 81. № 6. С. 56–62.
5. Эфрос А. Л. Локализация электронов в неупорядоченных системах (переход Андерсона) // Успехи физических наук. 1978. Т. 126. № 9. С. 41–65.
6. Eisenbach A. et al Glassy dynamics in disordered electronic systems reveal striking thermal memory effects // Physical review letters. 2016. V. 1117. N. 11. P. 116601.
7. Indeitsev D., Mochalova Y. Mechanics of multi-component media with exchange of mass and non-classical supplies // Dynamics of Mechanical Systems with Variable Mass. Springer, Vienna 2014. P. 165–194.
8. Муратиков К. Л., Глазов А. Л. Теоретическое и экспериментальное исследование фотоакустического и электронно-акустического эффектов в твердых телах с внутренними напряжениями // Журнал технической физики. 2000. Т. 70. № 8. С. 69–76.
9. Конторович В. М. Динамические уравнения теории упругости в металлах // Успехи физических наук. 1984. Т. 142. № 2. С. 265–307.
10. Индейцев Д. А., Осипова Е. В. Двухтемпературная модель оптического возбуждения звука в проводниках // Доклады Академии наук. 2017. Т. 473. № 2. С. 154–158.
11. Морозов Н. Ф. и др. О новой модели влияния электронного газа на термоакустику проводников при лазерном воздействии // Физическая мезомеханика. 2018. Т. 21. № 6. С. 17–22.
12. Lebanon E., Müller M. Memory effect in electron glasses: Theoretical analysis via a percolation approach // Physical Review B. 2005. V. 72. N. 17. С. 174202
13. Глазов А. Л., Муратиков К. Л. О возможности детектирования приповерхностных технологических напряжений в керамике методом фотоакустической микроскопии // Журнал технической физики. 2009. Т. 79. № 3. С. 105–109.