

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ НАУЧНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ  
«ФЕДЕРАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ЦЕНТР  
ИНСТИТУТ ПРИКЛАДНОЙ ФИЗИКИ РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК» (ИПФ РАН)

*на правах рукописи*

Оладышкин Иван Владимирович

# Механизмы оптико-терагерцовой конверсии на поверхности металлов

01.04.03 – радиофизика

Диссертация на соискание учёной степени  
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:  
к.ф.-м.н. В. А. Миронов

Нижний Новгород – 2018

## Оглавление

Оглавление.....	2
Введение.....	4
Обзор основных экспериментальных результатов .....	6
Обзор теоретических моделей ТГц отклика металлов .....	13
Глава 1. Мгновенный квадратичный отклик.....	23
1.1 Нелинейный поверхностный ток .....	24
1.2 Низкочастотные поля вблизи границы металл-вакуум.....	26
1.3 Излучение поверхностного тока.....	29
1.4 Нелинейные токи в гидродинамической модели среды .....	35
1.5 Излучение низкочастотных «гидродинамических» источников .....	41
1.6 Обобщение модели на случай анизотропной среды .....	50
1.6.1 Модель линейного отклика полуметалла .....	50
1.6.2 Нелинейный ток и его излучение.....	52
1.7 Заключение по Главе 1 .....	56
Глава 2. Тепловая нелинейность .....	59
2.1 Низкочастотная динамика электронов.....	60
2.2 Модель теплопереноса.....	63
2.3 Обобщение на случай непостоянной частоты столкновений .....	66
2.4 Заключение по Главе 2 .....	71
Глава 3. Гофрированные поверхности и наночастицы.....	73
3.1 Возбуждение поверхностного плазмона монохроматической электромагнитной волной.....	74
3.1.1 Граничные условия .....	74
3.1.2 Амплитуды отражённых волн .....	75
3.2 Затухание плазмона: поглощение и дифракционные потери.....	81

3.3	Вклад поверхностных плазмонов в ТГц отклик .....	86
3.4	О генерации ТГц излучения массивами частиц .....	88
3.5	Заключение по Главе 3 .....	90
	Заключение.....	92
	Список литературы.....	94

## Введение

### Актуальность тематики исследования

Оптические свойства твёрдых тел значительно различаются в случае воздействия на них непрерывного и импульсного излучения. Это связано не только с высокими интенсивностями полей в коротких импульсах, не достижимыми с помощью непрерывных генераторов, но и с проявлениями качественно новых физических процессов при уменьшении продолжительности воздействия. Отличие становится принципиальным, когда среда облучается лазерным импульсом фемтосекундной длительности, выводящим её из состояния термодинамического равновесия [1, 2]. Для твёрдого тела характерное время установления равенства температур электронов и кристаллической решётки обычно составляет несколько пикосекунд [1, 3, 4], то есть может на 1-2 порядка превосходить длительность оптического импульса. Это означает, что в течение всего времени взаимодействия с излучением среда находится в специфическом двухтемпературном состоянии, электродинамические свойства которого существенно отличаются от свойств термодинамически равновесного твёрдого тела [1, 3, 4]. Вместе с тем даже при неразрушающем воздействии на материал пиковая интенсивность лазерного излучения может достигать сотен ГВт/см<sup>2</sup>, вследствие чего становятся важными нелинейные эффекты, почти не проявляющиеся в непрерывном режиме. Один из таких эффектов – пондеромоторное воздействие оптического поля на электроны в металле, приводящее к возникновению низкочастотной поляризации с характерным временем порядка длительности лазерного импульса [5-9].

Детальное исследование взаимодействия ультракороткого оптического излучения с веществом становится всё более актуальным из-за бурного развития научных и технологических применений фемтосекундной лазерной техники. В самых разных сферах оказываются важными такие весьма общие явления, как нелинейное поглощение и отражение, возбуждение и релаксация плотности и температуры электронов на субпикосекундных временах, специфические проявления поверхности среды, нелинейная электро- и теплопроводность, возбуждение собственных электромагнитных мод среды [1-15]. Это касается задач абляции и лазерной модификации вещества [1-4], генерации

гармоник поля [10-12], ускорения электронов вблизи структурированных поверхностей и т.д.

Одно из известных явлений, сопровождающих воздействие фемтосекундного лазерного излучения на различные среды, – генерация широкополосных терагерцовых импульсов. В настоящее время использование нелинейной конверсии оптического излучения в более низкочастотное является наиболее перспективным направлением в получении коротких (1-2 пс) и интенсивных терагерцовых полей. Данный эффект наблюдался и исследовался в течение последних 15-20 лет во многих средах, как в режиме отражения от границы, так и при распространении лазерного импульса в среде [16-51]. В частности, была экспериментально исследована генерация ТГц излучения при отражении лазерных импульсов от полупроводников и полупроводниковых структур [16, 17, 39, 40], металлов [19-21, 36, 41-47] и полуметаллов [48, 49], генерация при оптическом пробое газов [23, 24] и при прохождении лазерных импульсов через нелинейные органические кристаллы [35]. Максимальная эффективность генерации ТГц сигнала на уровне 0,1-1% по энергии лазерного импульса была достигнута в экспериментах с кристаллами GaP, ниобатом лития и органическими кристаллами, а также при взаимодействии релятивистски сильных оптических импульсов с твердотельными образцами [50, 51].

В целом можно констатировать, что в данном направлении эксперимент заметно опережает теорию: в значительном числе работ механизм генерации остаётся дискуссионным, причём особенную сложность представляет интерпретация спектра наблюдаемого терагерцового сигнала. Это означает, что при развитии теоретических представлений о терагерцовом отклике различных сред можно ожидать появления новых схем оптико-терагерцовой конверсии, оптимизированных с точки зрения эффективности, управляемости, спектра излучения или других параметров.

С другой стороны, оптико-терагерцовая конверсия может стать средством исследования динамики носителей заряда в твёрдом теле на пикосекундных и субпикосекундных временных масштабах. В последние годы всё более активно ведутся экспериментальные исследования воздействия мощных лазерных и терагерцовых импульсов на твердотельные образцы, в частности – на графен и полуметаллы [52-56], при этом как оптическое излучение, так и терагерцовое используются в качестве пробного сигнала и в качестве накачки в различных комбинациях. На сегодняшний день такие эксперименты являются основным источником данных о физических процессах,

протекающих в металлах, полуметаллах, графене и других средах на временных масштабах от десятков фемтосекунд до нескольких пикосекунд. В то же время обсуждаемое явление конверсии фемтосекундных лазерных импульсов в терагерцовый сигнал ранее не рассматривалось с точки зрения исследования электродинамических свойств различных материалов (в том числе по уже указанной причине – отсутствие достоверных теоретических моделей).

Таким образом, развитие теоретических представлений о нелинейной электродинамике твёрдого тела в оптическом и терагерцовом диапазоне может способствовать как решению практических задач по генерации широкополосных ТГц импульсов, так и появлению новых экспериментальных методов для исследования процессов рассеяния, теплопереноса, возбуждения и релаксации носителей заряда на субпикосекундных временах. Представленная диссертационная работа посвящена развитию теоретических моделей нелинейного отклика поверхности твёрдых тел – металлов и полуметаллов – на субпикосекундных временных масштабах. Важно отметить, что тематика диссертации ограничивается неразрушающими режимами взаимодействия излучения с веществом, когда электродинамический отклик определяется электронной подсистемой твёрдого тела, а кристаллическая решётка остаётся неподвижным «резервуаром». Поскольку основное внимание в работе уделено механизмам и возможным применениям оптико-терагерцовой конверсии на поверхности металлов и полуметаллов, ниже приведён краткий обзор основных экспериментальных и теоретических исследований в данной области.

## **Обзор основных экспериментальных результатов**

### **Неструктурированная поверхность**

Впервые генерация терагерцового излучения при отражении фемтосекундных лазерных импульсов от поверхности металлов наблюдалась в экспериментах чешской группы (F. Kadlec, P. Kuzel, J.L. Coutaz) с образцами золота и серебра [19, 20], а также в эксперименте группы из США (D. J. Hilton и другие) с монокристаллическим железом [21]. Хотя последняя работа и выходит за рамки нашего рассмотрения из-за ферромагнитной природы исследуемой среды, необходимо упомянуть один из её результатов – выявление составляющей низкочастотного отклика, не связанной с намагниченностью образца.

Наличие такой составляющей говорит о существовании общего механизма терагерцового отклика для магнитных и немагнитных металлов.

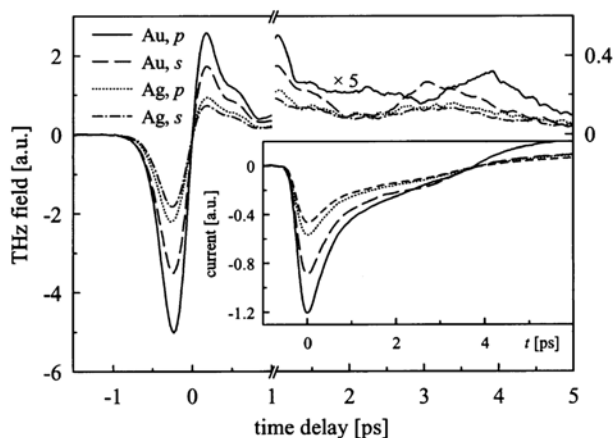


Рисунок 1. Временная форма ТГц импульсов, генерируемых на поверхности золота (Au) и серебра (Ag) лазерным импульсом с длиной волны 810 нм и плотностью энергии на поверхности 5,8 мДж/см<sup>2</sup>, полученная в работе [19]. На вставке изображён поверхностный ток, соответствующий данному излучённому полю.

Первые и последующие эксперименты в режиме отражения от металлов [19, 21, 36, 41] показали, что генерация ТГц излучения происходит с одинаковой по порядку величины эффективностью ( $10^{-7}$ – $10^{-6}$  по энергии лазерного импульса) на поверхности золота, серебра, меди, латуни и стали. Было обнаружено, что ТГц сигнал сонаправлен с отражённым оптическим излучением, имеет длительность порядка 1 пикосекунды (см. Рисунок 1) и широкий спектр с максимумом в диапазоне от 0,5 до 1 ТГц. В обсуждаемых экспериментах длительность лазерных импульсов составляла 50–100 фс, а плотность энергии оптического излучения на поверхности металла варьировалась в основном от 1 до 10 мДж/см<sup>2</sup> (до 80 мДж/см<sup>2</sup> в работе [36]). Оптимальная генерация наблюдалась для *p*-поляризованного лазерного импульса, причём зависимость эффективности генерации от угла падения имела немонотонный характер с ярко выраженным максимумом, определяемым видом металла (см. Рисунок 2). Угловая зависимость для *s*-поляризованного лазерного импульса имела максимум в районе 45° и не содержала таких особенностей. Независимо от поляризации оптического излучения, наблюдаемое ТГц излучение было *p*-поляризовано.

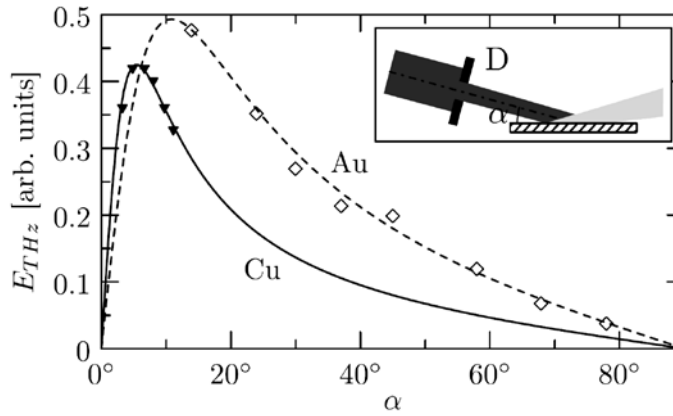


Рисунок 2. Зависимость амплитуды ТГц поля (отн. ед.) от угла падения лазерного импульса  $\alpha$  на поверхность металла (отсчитывается от поверхности) из работы [36]. Приведены результаты для образцов из золота (Au) и меди (Cu).

Отдельного внимания заслуживают результаты генерации ТГц излучения при отражении фемтосекундных лазерных импульсов от тонких металлических плёнок. Впервые такой эксперимент был описан в статье [20], где исследовались плёнки из золота. В данной работе было показано, что процесс генерации идёт одинаковым образом при толщине плёнки более 100–115 нм, а при меньших толщинах ТГц отклик резко исчезает (см. Рисунок 3). Авторы не привели последовательной интерпретации данного эффекта, однако предположили, что он может быть связан с кинетическими эффектами в электронном газе, поскольку время пролёта 100-нанометрового слоя от одной границы до другой со скоростью Ферми ( $\sim 10^8$  см/с) примерно совпадает с длительностью лазерного импульса. Более детальные исследования, описанные, например, в обзорной работе [47], показали, что дальнейшее уменьшение толщины золотой плёнки приводит к возобновлению терагерцового отклика при достижении порога перколяции (около 10 нм для золота) – момента перехода от однородного покрытия к фрагментарному.



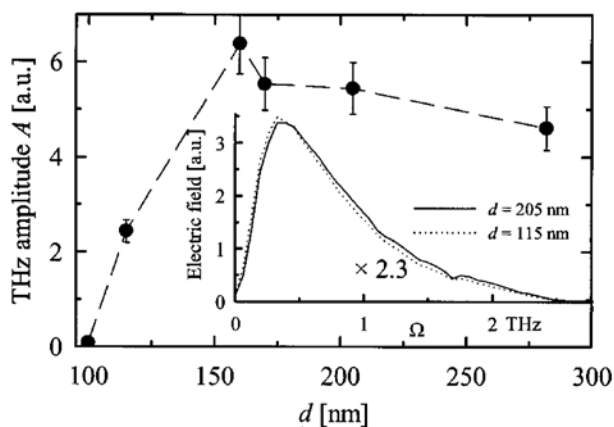


Рисунок 3. Зависимость амплитуды ТГц сигнала (отн. ед.) от толщины золотой плёнки (нм), на которой происходит генерация [20]. Наблюдается резкое падение эффективности конверсии при уменьшении толщины до 120-100 нм. На вставке: спектры ТГц сигнала для плёнок толщиной 115 нм и 205 нм.

В упомянутой выше обзорной статье [47] приводятся также экспериментальные данные, указывающие на критическую роль химической чистоты поверхности металла в процессе оптико-терагерцовой конверсии. Авторы пришли к выводу, что наблюдавшийся ранее ТГц отклик серебра целиком обусловлен химическим загрязнением поверхности: в проведённом эксперименте отклик вновь выращенных серебряных плёнок полностью отсутствовал, однако после пребывания образцов в воздушной среде в течение примерно 2 недель оптико-терагерцовая конверсия на их поверхности начала происходить с ненулевой эффективностью. Дополнительная диагностика поверхности в данной работе не проводилась.

Наблюдаемая в эксперименте зависимость энергии ТГц сигнала от энергии возбуждающего оптического импульса представляет одну из наибольших трудностей для теоретической интерпретации. Данные из различных работ по оптико-терагерцовой конверсии только на плоской поверхности металла демонстрируют разнообразие функциональных зависимостей – от квадратичной до экспоненциальной [19, 36, 47] (о структурированной поверхности см. подробнее в следующем разделе). Анализируя совокупность имеющихся данных, можно сказать, что при малых интенсивностях лазерного излучения генерация ТГц отклика, как и следует ожидать, является квадратичным нелинейным эффектом, а при увеличении интенсивности характер нелинейности изменяется различным образом в зависимости от металла.

## Гофрированная поверхность

Наряду с изучением оптико-терагерцовой конверсии на плоской границе металлов различные экспериментальные группы в течение последних 10 лет проводили исследования терагерцового отклика периодически структурированных металлических поверхностей [42, 46, 47, 57]. В рассматриваемых нами работах наноструктурирование поверхности производилось для достижения условий резонансного возбуждения поверхностных плазмонов падающим оптическим импульсом. Первый подобный эксперимент был поставлен в 2007 году [46] с использованием золотой фольги, выращенной на подложке. Достаточно информативный обзор этого и последующих экспериментов приведён в статье [47], содержащей, кроме того, и новые данные по оптико-терагерцовой конверсии на гофрированных образцах при низких плотностях энергии лазерного излучения. В ходе данных исследований было выявлено множество особенностей процесса генерации ТГц излучения, далеко не все из которых были интерпретированы теоретически. Остановимся кратко на некоторых из них.

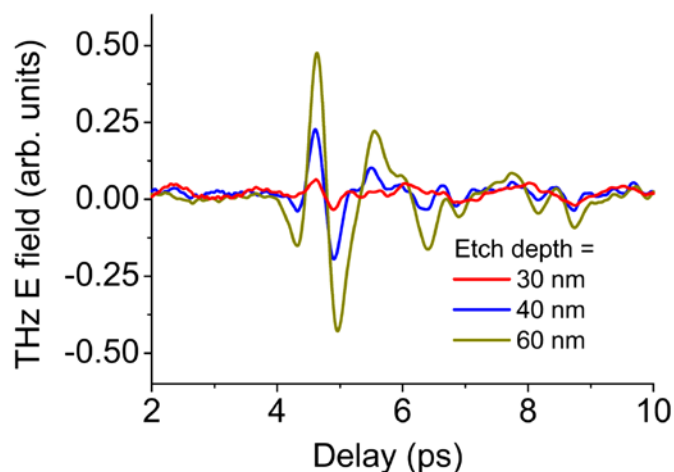


Рисунок 4. Временные формы ТГц импульсов, генерируемых на гофрированной металлической поверхности при различной глубине гофрировки (30, 40 и 60 нм) [47]. Электрическое поле измеряется в отн. единицах, время – в пикосекундах. Для образца с глубиной гофрировки 20 нм ТГц сигнал зарегистрирован не был.

Эффективность конверсии фемтосекундных лазерных импульсов в терагерцовое излучение на гофрированных образцах в целом демонстрирует резонансное поведение при изменении как азимутального, так и полярного угла падения лазерного импульса [46, 47, 57]. На кривой поглощения оптического излучения также видны максимумы около значения, соответствующего условию возбуждения поверхностного плазмона. Таким

образом, при максимально эффективной конверсии поглощение оптического излучения оказывается максимальным – как и в случае гладкой поверхности. Нужно отметить, что полная ширина резонансных кривых в обсуждаемых экспериментах составляет от 10 до 20°. В рассмотренных работах форма излучённого ТГц сигнала качественно не отличалась от случая плоской металлической поверхности и слабо зависела от условий возбуждения (см. Рисунок 4).

Данные из работ [42, 47, 57] показывают, что амплитуда терагерцового сигнала сначала возрастает с ростом амплитуды гофрировки металлической поверхности (см. Рисунок 4), а затем становится примерно постоянной или даже спадает – при гофрировке порядка 5-10% от оптической длины волны. При этом существует оптимальная для генерации толщина гофрированной золотой плёнки, которая в случае золота составляет 40-45 нм.

Степень нелинейности процесса генерации ТГц излучения представляет также большой теоретический интерес, прежде всего из-за обилия достаточно разнообразных экспериментальных данных. В частности, одна из целей экспериментального исследования [47] состояла в подтверждении квадратичного характера конверсии при достаточно малых интенсивностях лазерного излучения. Обобщая имеющиеся данные, для гофрированной поверхности золота можно утверждать следующее: процесс генерации ТГц излучения является квадратичным по крайней мере до плотностей энергии лазерного импульса порядка 0,02 мДж/см<sup>2</sup> [47], имеет степенной характер с показателем около 3,5 от плотности энергии  $\approx 0,25$  мДж/см<sup>2</sup> до 2,5 мДж/см<sup>2</sup>, после чего становится квадратичным как минимум до 3,5 мДж/см<sup>2</sup> [46].

Обратим внимание на важный результат из экспериментальной работы [57], в которой детально изучалась оптико-терагерцовая конверсия в золотой фольге на периодически структурированной подложке. Авторы наблюдали ТГц излучение, в том числе, и при падении лазерного импульса со стороны подложки, а не только при облучении из вакуума. Причём ТГц сигнал регистрировался по обе стороны фольги независимо от того, с какой стороны падал лазерный импульс. Эти измерения демонстрируют неприменимость обсуждаемой в работах [42, 46] теоретической модели, основанной на пондеромоторном ускорении эмитированных из металла электронов вблизи поверхности, поскольку эмиссия свободных электронов в сторону подложки и ускорение в ней невозможны.

Наконец, стоит указать на интересные экспериментальные результаты, полученные при генерации ТГц излучения при отражении фемтосекундных лазерных импульсов от массива металлических наночастиц [43, 44, 45]. В этих работах было установлено, что выполнение условий объёмного плазмонного резонанса в отдельной наночастице заметно влияет на эффективность оптико-терагерцовой конверсии на всей структуре. Как и в случае гофрированных поверхностей, были получены сложные зависимости энергии ТГц сигнала от энергии оптического импульса, содержащие 3 степенных участка с показателями 2, 5 и 1,5. Форму ТГц можно назвать типичной для таких экспериментов – длительность порядка 1-2 пикосекунд, спектр в районе 0,5-1 ТГц. В данных экспериментальных работах не представлено теоретических моделей процесса генерации, но указывается на важность возбуждения объёмных плазмонных мод для эффективной конверсии.

### **Моно- и поликристаллические полуметаллы**

В недавних экспериментах по генерации ТГц излучения с поверхности висмута [48] был получен ряд результатов, принципиально отличающих данный полуметалл от ранее исследованных нормальных металлов. Эксперименты проводились как с монокристаллическими, так и с поликристаллическими образцами висмута; использовались лазерные импульсы длительностью около 50 фс с плотностью потока энергии на поверхности образца до 4,8 мДж/см<sup>2</sup>.

Было обнаружено, что зависимость энергии ТГц сигнала от энергии лазерного импульса имеет степенной вид с показателем около 1,3-1,4 во всём доступном диапазоне как для монокристаллических, так и для поликристаллических образцов. В случае монокристалла эффективность генерации сильно зависела от ориентации облучаемой поверхности относительно кристаллографических осей; максимальная амплитуда сигнала наблюдалась при облучении плоскости образца, образованной осями симметрии  $C_3$  и  $C_2$ .

В случае поликристаллических образцов висмута было обнаружено заметное увеличение эффективности конверсии при нанесении на поверхность образца параллельных бороздок. Электрическое поле ТГц излучения в этих экспериментах было всегда поляризовано параллельно нанесённым на поверхность полосам, независимо от направления падения и поляризации лазерного излучения.

Наиболее неожиданные экспериментальные результаты работы [48] связаны с асимметричностью ТГц отклика висмута и его сильной зависимостью от структуры облучаемой поверхности. Было установлено, что поворот монокристаллического образца вокруг оси  $C_1$  на  $180^\circ$  может изменять амплитуду ТГц сигнала от плоскости, перпендикулярной данной оси, на 1-2 порядка. Измеренная зависимость энергии ТГц излучения от угла падения лазерного импульса (когда плоскость падения образована осями  $C_1$  и  $C_3$ ) в диапазоне от  $-90^\circ$  до  $+90^\circ$  оказалась асимметричной для всех монокристаллических образцов. Отметим, что ранее в работе [49] наблюдалась инверсия терагерцового сигнала, генерируемого на боковой грани ориентированных кристаллов графита (HOPG – highly oriented pyrolytic graphite), при повороте образца на  $180^\circ$ . Таким образом, в случае графита имеет место антисимметрия ТГц отклика, а в случае висмута – полное отсутствие симметрии. В целом эти результаты не противоречат собственным свойствам симметрии обоих кристаллов (т.к. вращение вокруг оси  $C_1$  на  $180^\circ$  не переводит кристалл в себя), однако общепринятая микроскопическая модель конверсии фемтосекундных лазерных импульсов в ТГц излучение в подобных средах на данный момент отсутствует.

### **Обзор теоретических моделей ТГц отклика металлов**

В целом можно констатировать, что на сегодняшний день теоретические модели оптико-терагерцовой конверсии на поверхности металлов заведомо не могут интерпретировать всю совокупность экспериментальных данных для гладких и структурированных металлических поверхностей. Более того, не существует каких-либо общепринятых механизмов генерации ТГц излучения, на которые можно было бы опираться при разработке новых экспериментальных схем или при численном моделировании. Тем не менее, за последние годы достигнут существенный прогресс в понимании механизмов ТГц отклика, в том числе благодаря экспериментальным и теоретическим работам, выполненным в ИПФ РАН. Краткий обзор, приведённый ниже, включает лишь наиболее актуальные результаты, необходимые для уточнения места диссертационной работы в общей картине теоретических исследований в данной области.

## **Мгновенный квадратичный отклик**

В первых экспериментальных работах по генерации ТГц с поверхности металлов [19-21] были представлены лишь феноменологические модели процесса, описывающие низкочастотный отклик в терминах тензора нелинейной восприимчивости среды. Первые микроскопические модели оптико-терагерцовой конверсии были развиты в статьях [5-8], выполненных теоретической группой А.А. Фролова, С.А. Урюпина, С.Г. Бежанова и др. в 2006-2010 годах. В данных работах описывался механизм мгновенного квадратичного отклика свободных электронов в металле на воздействие лазерного импульса пондеромоторного характера (в основном в гидродинамической модели электронного газа). Позднее в рамках гидродинамического подхода был описан механизм генерации огибающей лазерного импульса при падении на металл под произвольным углом [9].

Данный класс теоретических моделей позволил интерпретировать заметную часть экспериментальных данных: черенковскую диаграмму направленности и поляризацию ТГц излучения, а также зависимость эффективности конверсии от угла падения и от поляризации лазерного импульса. Одним из важных следствий модели низкочастотного отклика, изложенной в работе [9], стал вывод о перспективности перехода от металлов к полуметаллам – как к материалам с меньшей концентрацией и эффективной массой носителя заряда. В дальнейшем на основании этих результатов была построена простейшая теоретическая модель ТГц отклика для случая полуметаллов [58], а затем проведена серия экспериментов с моно- и поликристаллами висмута [48].

Очевидный недостаток, которым обладают модели мгновенного отклика металла на воздействие лазерного излучения, – это, прежде всего, невозможность интерпретировать наблюдаемую длительность терагерцового сигнала, составляющую порядка 1-2 пикосекунд. Пондеромоторная сила и подобные ей градиентные источники на границе металла активны лишь во время действия самого лазерного импульса и поэтому генерируют низкочастотные поля примерно такой же длительности – около 50-70 фс для большинства используемых лазерных систем. Эксперименты с различными системами детектирования низкочастотного излучения, в том числе с применением входных полосовых фильтров в диапазоне 0,5-2 ТГц [41, 48], исключают объяснение данного несоответствия трансформацией спектра в детектирующем нелинейно-оптическом кристалле.

Учёт только пондеромоторного воздействия приводит и к другим несоответствиям с экспериментальными данными:

- 1) существенное занижение полной энергии ТГц излучения;
- 2) трудность интерпретации неквадратичных участков зависимости энергии ТГц сигнала от энергии оптического импульса;
- 3) невозможность объяснить резкое ослабление оптико-терагерцовой конверсии на золотой фольге толщиной менее 100 нм (т.к. в данной модели низкочастотный отклик целиком формируется в оптическом скин-слое материала, составляющем примерно 12 нм в случае золота).

Таким образом, модели мгновенного квадратичного отклика электронов верно описывают общие электродинамические характеристики процесса генерации ТГц излучения, но для количественной интерпретации эксперимента необходимо учитывать другие механизмы возбуждения низкочастотных полей.

### **Ток увлечения**

Ещё одна модель конверсии фемтосекундных лазерных импульсов в низкочастотное излучение, изложенная впервые в работе [59], основывается на возбуждении так называемого тока увлечения. В соответствии с [59], ток увлечения может существовать после действия лазерного импульса на времена порядка обратной частоты столкновений электронов, т.е. не более 50 фс при типичных параметрах металлов при комнатной температуре. Как отмечено в других статьях авторов [60, 61], амплитуда низкочастотных полей, создаваемых током увлечения в  $v\tau_p$  раз больше, чем в случае пондеромоторного воздействия ( $\nu$  – эффективная частота столкновений электронов на оптической частоте,  $\tau_p$  – длительность лазерного импульса). Тем не менее, в рамках данной модели остаётся без интерпретации наблюдаемая длительность ТГц сигнала и зависимость его полной энергии от толщины облучаемого образца.

### **Градиент температуры**

В работе [62] было показано, что неоднородный нагрев электронов вблизи поверхности и последующее перераспределение тепла должны приводить к формированию запаздывающего низкочастотного отклика металла на воздействие

лазерного импульса. Подробное изложение теплового механизма конверсии приведено во второй главе.

В рамках данной модели генерации длительность ТГц импульса связана уже не с длительностью воздействия лазерного излучения, а со скоростью релаксации тепла внутри электронной подсистемы или со скоростью выравнивания температур электронного газа и кристаллической решётки. В хорошо проводящих металлах (золото, медь, алюминий и т.д.) время охлаждения приповерхностных электронов может заметно отличаться, поскольку оно сильно зависит от длины свободного пробега электрона; кроме того, это время также изменяется с ростом температуры электронной подсистемы. Типичные длительности релаксации тепла из скин-слоя лежат в диапазоне от 100 фемтосекунд до 1 пикосекунды [1, 3, 4], что гораздо лучше соответствует наблюдаемой длительности ТГц импульсов. Также тепловой механизм ТГц отклика даёт адекватную оценку амплитуды генерируемого низкочастотного поля и объясняет отсутствие генерации с достаточно тонкой фольги [62]. В рамках модели форма излучённого низкочастотного сигнала на границе металла представляет собой производную по времени от температуры электронов вблизи его поверхности, что позволяет говорить о терагерцовом импульсе как об источнике информации о динамике электронной подсистемы на субпикосекундных временах [63].

Обсуждаемая модель ТГц отклика металлов допускает обобщение на случай зависящей от температуры частоты столкновений электронов  $\nu(T)$  [63]: нагрев электронной подсистемы становится не квадратичным по оптическому полю, и соответствующим образом изменяется зависимость энергии ТГц излучения от энергии лазерного импульса  $W_{THz}(W_{opt})$ . Конкретный вид функции  $\nu(T)$  определяется доминирующим механизмом рассеяния – электрон-электронные столкновения с перебросом [64], электрон-фононные столкновения или рассеяние на примесях. Заметим, что по экспериментальному графику  $W_{THz}(W_{opt})$  можно найти температурную зависимость частоты столкновений  $\nu(T)$ .

Необходимо также обратить внимание на результаты, представленные в недавней теоретической статье [60]. В этой работе проводится сравнение трёх механизмов формирования низкочастотного тока в металле, упомянутых выше: пондеромоторное воздействие, генерация тока увлечения и неоднородный нагрев электронов. Авторы приходят к заключению, что доминирующими источниками являются последние два,



причём их амплитуды примерно одинаковы и в  $\nu\tau_p$  превосходят амплитуду источника, связанного с воздействием пондеромоторного типа; это, в частности, подтверждает вывод упомянутой выше статьи [62].

Таким образом, на данный момент существует три основных теоретических модели оптико-терагерцовой конверсии на плоской поверхности металла. Последовательные модели, описывающие подобные процессы на гофрированных металлических поверхностях и плёнках, к настоящему времени не развиты.

### **Цель работы**

Цель диссертационной работы – теоретическое исследование физических механизмов, которые могут приводить к формированию терагерцового отклика металлов и металлических структур на воздействие фемтосекундными лазерными импульсами, а также интерпретация имеющихся экспериментальных данных. Основные задачи:

- 1) исследование роли пондеромоторного воздействия лазерного импульса и других мгновенных квадратичных нелинейных эффектов в процессе генерации низкочастотных токов вблизи поверхности металла;
- 2) обобщение модели мгновенного квадратичного отклика на случай среды с анизотропной эффективной массой носителей заряда (в приложении к полуметаллам);
- 3) исследование генерации терагерцовых полей под действием градиента электронной температуры, возникающего при нагреве электронного газа в лазерном поле;
- 4) обобщение теплового механизма генерации терагерцового излучения на случай нелинейного режима нагрева электронов;
- 5) исследование роли поверхностных плазмонов в формировании терагерцового отклика гофрированных металлических поверхностей на импульсное лазерное воздействие;
- 6) оценка вклада неоднородного нагрева и процессов перераспределения температуры в терагерцовый отклик металлических наночастиц.

## **Методы исследования**

Теоретические исследования, представленные в работе, основаны на гидродинамическом описании электронного газа в металлах и полуметаллах. Электромагнитные поля в данных средах описывались системой уравнений Максвелла самосогласованным образом. Этот подход успешно применялся ранее и продолжает использоваться при развитии теории генерации второй, третьей и более высоких гармоник, построении моделей лазерного нагрева и абляции и в других задачах нелинейной оптики металлов. При аналитическом решении поставленных задач применялась теория возмущений, что оказалось возможным благодаря относительно слабой нелинейной восприимчивости рассматриваемых сред. Также в работе широко использовался спектральный подход; в частности, при решении задач о генерации электромагнитных полей заданной системой токов и при рассмотрении трансформации падающей электромагнитной волны в поверхностный плазмон.

Развитие аналитической теории в большинстве разделов сопровождается сопоставлением с экспериментальными данными из различных работ, в ряде случаев – сравнением с результатами численного моделирования, которое было выполнено Д.А. Фадеевым (ИПФ РАН).

## **Научная новизна работы**

В диссертационном исследовании впервые в рамках гидродинамического описания проведено рассмотрение полной системы низкочастотных нелинейных источников тока, возникающих в металле под действием лазерного импульса, падающего на его поверхность под произвольным углом. Показано, что помимо исследованной ранее пондеромоторной силы при наклонном падении необходимо учитывать два других нелинейных источника, равных ей по порядку величины. Также в работе предпринято обобщение развитой модели мгновенного квадратично отклика на случай полуметалла – среды с анизотропной эффективной массой носителей заряда.

В диссертации впервые предложен и теоретически проанализирован тепловой механизм генерации терагерцового излучения при отражении фемтосекундных лазерных импульсов от поверхности металла. Показано, что неоднородный нагрев электронного газа лазерным импульсом приводит к формированию градиента температуры, под

действием которого возбуждаются низкочастотные токи в среде и происходит генерация электромагнитных полей терагерцового диапазона.

Выполнено обобщение теплового механизма ТГц отклика на случай нелинейного режима нагрева металла, при котором частота столкновений электронов меняется с ростом их температуры. На основе данного обобщения предпринята первая попытка объяснения (в рамках микроскопической модели) неквадратичных зависимостей энергии ТГц сигнала от энергии лазерного импульса, наблюдаемых в различных экспериментах. Как следствие, предложен косвенный метод определения частоты столкновений свободных электронов и восстановления динамики температуры электронной подсистемы вблизи поверхности металла по измерениям полной энергии и временной формы терагерцового сигнала.

В рамках обобщения теплового механизма генерации ТГц отклика предложена модель конверсии поверхностных плазмонов на оптической частоте в низкочастотное излучение. Показано, что учёт поверхностных плазмонов в виде дополнительного канала поглощения лазерного излучения позволяет интерпретировать как сам факт резонансного поведения ТГц сигнала, так и некоторые экспериментальные особенности процесса конверсии. Кроме того, в работе впервые указано на возможность возникновения низкочастотных токов в металлических наночастицах из-за их неоднородного нагрева и последующего перераспределения тепла в электронной подсистеме.

### **Теоретическая и практическая значимость**

В представленной работе было впервые теоретически проанализировано электромагнитное излучение терагерцового диапазона, возникающие из-за теплового воздействия фемтосекундного лазерного излучения на металлы. Полученные аналитические выражения для генерируемых полей являются достаточно общими и с высокой точностью подтверждаются результатами численного моделирования. Поэтому можно утверждать, что основная теоретическая значимость диссертации заключается в обобщении известного эффекта тепловой нелинейности на случай взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов с поверхностью металла и металлическими структурами.

Результаты диссертационного исследования позволяют интерпретировать многие экспериментальные особенности конверсии фемтосекундных лазерных импульсов в терагерцовое излучение, включая запаздывающий характер ТГц сигнала и сложную зависимость его энергии от энергии лазерного импульса. Практическая значимость работы связана, прежде всего, с предложением нового экспериментального метода исследования кинетики электронов в металлах, опирающегося на эффект оптико-терагерцовой конверсии.

### **Основные положения, выносимые на защиту**

- 1) В рамках гидродинамического описания, учитывающего поперечные нелинейные эффекты, воздействие фемтосекундного лазерного импульса на поверхность металла приводит к возникновению нескольких источников низкочастотных токов. Электромагнитное излучение всех этих источников имеет идентичную волновую форму и одинаковую фазу, а также длительность порядка длительности лазерного импульса.
- 2) Неоднородный нагрев электронов в скин-слое металла фемтосекундным лазерным излучением сопровождается возникновением объёмного разделения зарядов и генерацией электромагнитного импульса терагерцового диапазона. Развита теория даёт адекватную оценку полной энергии терагерцового сигнала, а также позволяет объяснить его запаздывающий характер, диаграмму направленности, зависимость от угла падения лазерного импульса и другие экспериментальные особенности.
- 3) Включение зависимости частоты столкновений электронов от их температуры в тепловую модель генерации приводит к неквадратичной зависимости энергии ТГц сигнала от интенсивности лазерного импульса, что позволяет интерпретировать экспериментальные данные по ТГц отклику металлов при плотностях энергии оптического излучения порядка единиц мДж/см<sup>2</sup> и более.
- 4) В случае гофрированной поверхности возбуждение и поглощение поверхностных плазмонов создаёт дополнительный канал нагрева электронной подсистемы металла. Учёт этого эффекта в тепловой модели генерации ТГц полей позволяет интерпретировать резонансный характер ТГц отклика гофрированных металлов при выполнении условий возбуждения поверхностных плазмонов, а также получить оценку энергии ТГц сигнала, адекватную имеющимся экспериментальным данным.

## **Достоверность полученных результатов**

Представленное исследование опирается на известные физические модели, широко используемые при изучении взаимодействия мощного электромагнитного излучения с металлами, а также на ряд общетеоретических методов, имеющих строгое математическое обоснование: теорию возмущений, спектральные разложения и другие. Основные аналитические результаты сопоставлялись с данными численного моделирования, полученными в рамках аналогичных физических моделей, с экспериментальными данными и теоретическими результатами других научных групп.

## **Публикации и апробация результатов**

Основные результаты диссертационной работы обсуждались на научных семинарах в Институте прикладной физики РАН, Институте физики микроструктур РАН, Всероссийском научно-исследовательском институте автоматики им. Н.Л. Духова, НИИ физики РГПУ им. А.И. Герцена, а также докладывались на следующих конференциях, совещаниях и научных школах:

- International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2016), Копенгаген, Дания, 2016;
- 16-я, 17-я и 18-я Международные конференции “Laser Optics”, Санкт-Петербург, 2014, 2016 и 2018 годы;
- International Conference on Metamaterials and Nanophotonics METANANO – 2017, Владивосток, 2017;
- The 4th Russia-Japan-USA Symposium on Fundamental and Applied Problems of Terahertz Devices and Technologies, IMT, ISSP, Черноголовка, Россия, 2015;
- XVII научная школа «Нелинейные Волны – 2016», Нижний Новгород, 2016;
- XVI Всероссийская школа-семинар «Физика и применение микроволн» имени А.П. Сухорукова («Волны-2017»), Можайск, 2017;
- 20-я Сессия молодых учёных, Нижний Новгород, 2015;
- XXII–XXVI научные сессии Совета РАН по нелинейной динамике, 2013-2017 годы.

Материалы диссертации были опубликованы в ведущих российских и зарубежных научных журналах: Optics Letters, Journal of Optics, Письма в ЖЭТФ, ЖЭТФ и других. Всего по теме исследования опубликовано 8 статей в рецензируемых журналах (7 из них – в

журналах, рекомендованных ВАК для публикации основных материалов), 1 электронный препринт, 6 статей в сборниках тезисов докладов и сборниках трудов международных конференций. Представленные результаты были включены в число основных результатов научной работы Института прикладной физики РАН в 2015 и 2016 годах, а также отмечены премиями Конкурсов работ молодых учёных ИПФ РАН в 2015, 2016 и 2017 г. и Открытого конкурса научных работ молодых учёных в области физики наноструктур и наноэлектроники (ИФМ РАН) в 2016 году.

## Глава 1. Мгновенный квадратичный отклик

В данной главе излагается механизм генерации ТГц излучения на поверхности металла, связанный с мгновенным квадратичным откликом электронов на воздействие  $p$ -поляризованного лазерного импульса. Будет подробно рассмотрено коллективное низкочастотное движение электронного газа вблизи поверхности под действием оптического поля (здесь и далее низкочастотными называются процессы, имеющие временной масштаб порядка огибающей лазерного импульса). На основе гидродинамической модели электронного газа будут определены нелинейные приповерхностные токи и получены соответствующие электродинамические характеристики низкочастотного излучения.

Как было отмечено во введении, возбуждение низкочастотных полей пондеромоторной силой при нормальном падении мощного лазерного импульса на плотную плазму было исследовано ранее в условиях нормального и аномального скинирования оптического излучения в ряде работ [5-8, 59]. Экспериментальные данные по генерации ТГц излучения с поверхности металлов [19, 21, 36], отвечающие ситуации плотной и холодной плазмы, показывают, что данный процесс эффективен в поле  $p$ -поляризованного оптического излучения и характеризуется немонотонной зависимостью от угла падения лазерного импульса. В то же время,  $s$ -поляризованное оптическое излучение слабо возмущает электронную плотность вблизи поверхности металла и практически не возбуждает низкочастотные токи.

В поле оптического импульса источником ТГц излучения является область перекрытия падающего и отражённого лазерного пучка. В ней возбуждается нелинейный ток, который распространяется вдоль поверхности с фазовой скоростью, большей скорости света, и генерирует черенковское ТГц излучение. Характерный временной масштаб нелинейного тока и генерируемого излучения равен длительности лазерного импульса. Выражение для нелинейного поверхностного тока в простейшей модели свободных электронов (модель Друде) найдено в разделе 1.1. Далее, в разделах 1.2 и 1.3, представлено аналитическое решение электродинамической задачи о низкочастотном излучении найденного поверхностного тока в металле, получено выражение для энергии терагерцового импульса как функции угла падения лазерного импульса. В разделах 1.4 и 1.5 проведено более полное исследование структуры низкочастотных полей и токов в

металле на основе гидродинамической модели среды, описана полная система усреднённых сил, действующих со стороны оптического поля на электронный газ.

Изложение аналитических результатов будет сопровождаться данными численного моделирования, включающего в себя решение системы уравнений Максвелла и уравнений гидродинамики полуограниченного электронного газа с конечной температурой, на который падает оптический импульс. Автором численного кода, а также всех результатов, полученных в расчётах, является Д.А. Фадеев (ИПФ РАН). Результаты расчётов позволили проверить и уточнить аналитическую модель в приповерхностной области; в данной главе, как и в последующих, данные моделирования приводятся исключительно в качестве иллюстрации.

### 1.1 Нелинейный поверхностный ток

Механизм возбуждения нелинейного поверхностного тока при отражении лазерного излучения от металла в рамках модели свободных электронов состоит в следующем. В поле ТМ волны на поверхности металла индуцируется поверхностный заряд  $\sigma$ , определяемый нормальной к границе компонентой поля  $E_{\perp}$ :

$$\sigma = \frac{E_{\perp}}{4\pi}. \quad (1.1)$$

Действие продольной составляющей поля  $E_{\tau}$  приводит к смещению этого заряда вдоль поверхности со скоростью  $v_{\tau}$ . Интегрируя уравнение движения

$$\frac{dv_{\tau}}{dt} = -\frac{e}{m} E_{\tau} e^{i\omega_0 t}, \quad (1.2)$$

получаем

$$v_{\tau} = i \frac{e E_{\tau}}{m \omega_0} e^{i\omega_0 t}, \quad (1.3)$$

где  $\omega_0$  – частота лазерного излучения. Усреднив выражение для поверхностного тока  $\mathbf{j}_{surf} = \sigma \mathbf{v}_{\tau}$  по периоду оптического поля  $T = 2\pi/\omega_0$ , найдём для низкочастотной составляющей тока

$$\mathbf{j}_{surf} = Re \frac{E_{\perp}^* i e E_{\tau}}{8\pi m \omega_0}. \quad (1.4)$$

При получении (1.4) мы воспользовались соотношениями (1.1) и (1.3); суммарное поле падающей и отражённой волны составляет



$$\begin{aligned} E_{\perp} &= (1 + R)E_0 \cos \alpha \\ E_{\tau} &= (1 - R)E_0 \sin \alpha, \end{aligned} \quad (1.5)$$

где  $E_0$  – амплитуда падающей волны, угол падения  $\alpha$  отсчитывается от поверхности металла.

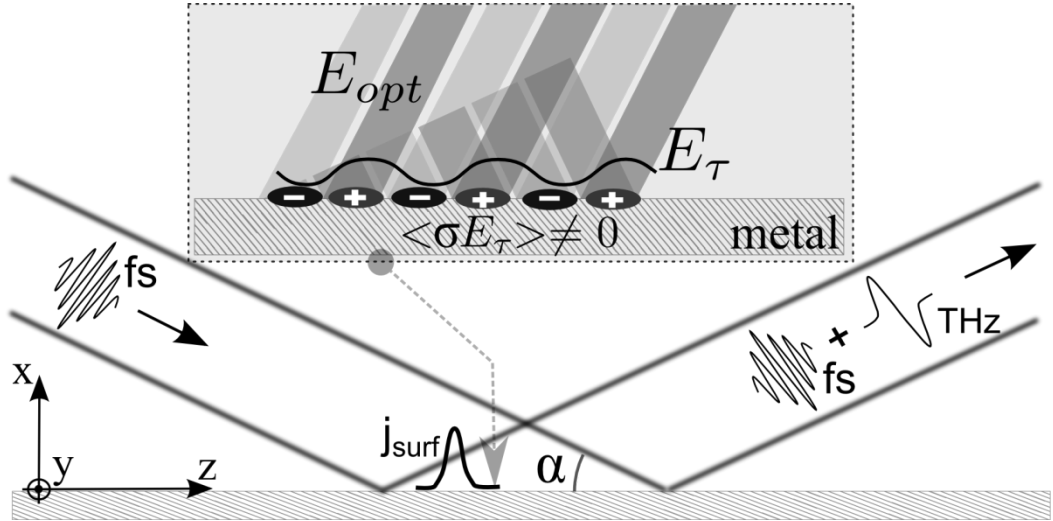


Рисунок 1.1. Общая схема процесса генерации ТГц излучения при отражении лазерного импульса от поверхности металла. Область взаимодействия оптического излучения с металлом более подробно изображена на вставке.

Для металла в оптическом диапазоне частот ( $\nu \ll \omega_0 \ll \omega_p$ ,  $\omega_p$  – плазменная частота электронного газа в металле,  $\nu$  – эффективная частота столкновений), коэффициент отражения  $R$  удобно представить в следующем виде:

$$R = \frac{\varepsilon \sin \alpha - \sqrt{\varepsilon}}{\varepsilon \sin \alpha + \sqrt{\varepsilon}}, \quad (1.6)$$

где  $\varepsilon \approx -\frac{\omega_p^2}{\omega_0^2}$ . Принимая во внимание (1.5) и (1.6), находим окончательное выражение для поверхностного тока (1.4):

$$j_{surf} = |E_0|^2 \frac{e\omega_p}{2\pi m\omega_0^2} \frac{\sin^2 \alpha \cos \alpha}{\frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} \sin^2 \alpha + 1}. \quad (1.7)$$

В поле падающего на поверхность металла лазерного импульса величина  $|E_0|$  является функцией от «бегущей» координаты  $(t - z \cos \alpha / c)$ , где  $t$  – время,  $z$  – координата вдоль поверхности (см. Рисунок 1.1). Это приводит к формированию источника электромагнитного излучения, который двигается по поверхности со сверхсветовой скоростью. Однако полученным выражением (1.7) нельзя воспользоваться непосредственно для определения черенковского излучения. Поскольку источник

расположен на границе раздела сред и создаёт поля как в вакууме, так и внутри металла, для нахождения излучения необходимо решить соответствующую электродинамическую задачу. В некоторой модельной постановке это будет сделано в следующем разделе.

## 1.2 Низкочастотные поля вблизи границы металл-вакуум

Аналитическое исследование структуры поля вблизи границы раздела двух сред (вакуум-металл) можно провести для достаточно широкого лазерного пучка. Во всех обсуждаемых нами экспериментах оптический импульс вблизи поверхности металла имеет диаметр порядка 1-10 мм и длительность 50-100 фс, то есть ширина пучка на 2 порядка превосходит длину импульса. Поэтому можно считать, что сторонний поверхностный ток (1.7), возникающий в процессе отражения импульса, является функцией бегущей координаты  $\xi = t - z \cos \alpha / c$  и зависит от  $z$  адиабатически медленно. В этом случае возбуждаемые поля являются функциями  $\xi$  и  $x$ , где ось  $x$  направлена перпендикулярно поверхности металла, полупространство  $x < 0$  занимает металл. Далее рассмотрим отдельно консервативный случай, когда характерная частота  $\omega$  тока  $j_{surf}(t)$  заметно превышает частоту соударений электронов в металле  $\nu$ , и обратную диссипативную ситуацию, когда  $\nu \gg \omega$ .

### Консервативный скин-слой

Для описания электромагнитных полей в плотной плазме удобно воспользоваться волновым уравнением для тангенциальной компоненты электрического поля  $E_z \equiv E$ . Переходя к «бегущей» системе координат, получаем следующие уравнения для полей в вакууме и в металле в условиях  $\nu \ll \omega$ :

$$\frac{\sin^2 \alpha}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial \xi^2} E_z - \frac{\partial^2}{\partial x^2} E_z + \frac{\omega_p^2}{c^2} E_z = 0, \quad x \leq 0 \quad (1.8)$$

$$\frac{\sin^2 \alpha}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial \xi^2} E_z - \frac{\partial^2}{\partial x^2} E_z = 0, \quad x > 0. \quad (1.9)$$

На границе раздела сред ( $x = 0$ ) тангенциальная компонента электрического поля остаётся непрерывной, а магнитное поле испытывает скачок, связанный с наличием поверхностного тока. Запишем граничные условия, обозначая индексом «1» нижнее полупространство (плазма), а индексом «2» – верхнее (вакуум):

$$E_{z1} = E_{z2}, \quad (1.10)$$

$$H_{y2} - H_{y1} = \frac{4\pi}{c} j_{surf} \quad (1.11)$$

где  $j_{surf}$  определяется выражением (1.7). Уравнения (1.8)-(1.9) могут быть решены аналитически в Фурье-представлении, однако для упрощения выкладок используем тот факт, что в условиях задачи продольный масштаб поверхностного тока  $l_{\parallel} = \tau / \cos \alpha$  ( $\tau$  – длительность лазерного импульса) значительно больше глубины скин-слоя в металле и пренебрежём первым слагаемым в уравнении (1.8). В данном приближении уравнение описывает «нормальное» скинирование электромагнитного поля в металле:

$$E_z(\xi, x) = E_z(\xi) \exp\left(\frac{\omega_p}{c} x\right). \quad (1.12)$$

Используя уравнения Максвелла, перепишем граничное условие (1.11) в том же предположении:

$$\left(\frac{\partial E_z}{\partial x}\right)_2 - \left(\frac{\partial E_z}{\partial x}\right)_1 = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial j_{surf}}{\partial \xi}. \quad (1.13)$$

Решение в нижнем полупространстве (1.12) и граничное условие (1.13), с учётом непрерывности  $E_z$  и неравенства  $\omega_{THz} \ll \omega_p$ , дают значение тангенциальной компоненты поля вблизи поверхности:

$$E_z = \frac{4\pi}{c\omega_p} \frac{\partial j_{surf}}{\partial \xi}. \quad (1.14)$$

Кроме тангенциальной компоненты  $E_z$  электрическое поле имеет также нормальную составляющую  $E_x$ , порождаемую квазистатическим поверхностным зарядом (который определяется уравнением непрерывности). Мы не будем останавливаться на вычислении компоненты  $E_x$ , т.к. она не понадобится в дальнейшем для вычисления полной энергии излучения. По известному электрическому полю над поверхностью металла (1.14) нетрудно найти магнитное поле, используя уравнения Максвелла:

$$H_y = \frac{E_z}{\sin \alpha}. \quad (1.15)$$

Наконец, поток энергии низкочастотного излучения с единицы поверхности металла (т.е. нормальная компонента вектора Пойнтинга) составляет:

$$S_x = \frac{c}{4\pi} E_z H_y = \frac{4\pi}{c\omega_p^2 \sin \alpha} \left(\frac{\partial j_{surf}}{\partial \xi}\right)^2. \quad (1.16)$$

Приведённые выражения позволяют судить о том, как наличие металла в нижнем полупространстве влияет на излучение заданного поверхностного тока. В отсутствие

металла решение для тангенциального магнитного поля  $H_y$  вблизи поверхности имело бы вид

$$H_y^0 = \frac{2\pi}{c} j_{surf}, \quad (1.17)$$

а для электрического поля

$$E_z^0 = \frac{2\pi}{c} j_{surf} \sin \alpha. \quad (1.18)$$

Отсюда видно, что наличие проводящей среды в полупространстве  $x < 0$  изменяет вакуумное решение (1.17)-(1.18), добавляя некоторый вес каждой Фурье-компоненте электромагнитного поля:

$$E_z(\omega) = \frac{2i}{\sin \alpha} \frac{\omega_0}{\omega_p} E_z^0(\omega), \quad (1.19)$$

где  $E_z(\omega)$  – спектр низкочастотного сигнала. Таким образом, мощность излучения тока на поверхности металла зависит от его временной производной. Поскольку поверхностный ток  $j_{surf}$  определяется огибающей лазерного поля, то в рамках рассматриваемой модели происходит, по существу, детектирование электромагнитного импульса при взаимодействии с поверхности металла. При этом длительность терагерцового импульса мало отличается от длительности лазерного (см. (1.7) и (1.14)).

### **Диссипативный скин-слой**

Перейдём к краткому рассмотрению электромагнитных полей поверхностного тока в металле в случае «полностью» диссипативного скин-слоя, используя для диэлектрической проницаемости металла плазменную формулу с частотой столкновений  $\nu \gg \omega_0$

$$\varepsilon \approx -i \frac{4\pi\delta}{\omega_0}, \quad (1.20)$$

где  $\delta = \frac{\omega_p^2}{4\pi\nu}$  – проводимость металла.

Решение задачи о нахождении ближних полей полностью аналогично предыдущему. Разница состоит в том, что вместо волнового уравнения (1.8) для тангенциального электрического поля в металле на низких частотах следует использовать уравнение диффузии, в котором коэффициент диффузии определяется проводимостью среды  $\sigma$ . Решение для комплексной амплитуды электрического поля  $E_z(\omega)$  имеет вид

$$E_z(\omega) = \sqrt{4\pi i \frac{\omega_0}{\delta} \frac{j_{surf}(\omega)}{c}}. \quad (1.21)$$

Таким образом, спектральные компоненты поля в присутствии проводящего материала в нижнем полупространстве также приобретают вес по сравнению с вакуумным решением (1.18):

$$E_z(\omega) = \sqrt{i \frac{\omega_0}{\pi \delta} \frac{1}{\sin \alpha}} E_z^0(\omega) \quad (1.22)$$

Здесь не удаётся найти столь же простого выражения для плотности потока энергии, как в консервативном случае. Однако можно вычислить полную энергию низкочастотного импульса, излучаемого при отражении лазерного пучка гауссовой формы. В следующем разделе мы проведём соответствующие вычисления как в консервативном, так и в диссипативном случае. Кроме того, для первой (консервативной) ситуации будет найдена диаграмма направленности излучения и форма импульса в дальней зоне.

### 1.3 Излучение поверхностного тока

Реальный лазерный импульс обладает конечным радиальным размером: поэтому импульс нелинейного тока пробегает по ограниченному пятну на поверхности металла, на которое попадает лазерное излучение. Чтобы поля вблизи поверхности по-прежнему описывались формулам (1.13)-(1.15), необходимо адиабатически медленное изменение импульса тока при распространении вдоль границы раздела. Кроме того, характерный масштаб пятна по оси  $y$  должен быть много больше продольного масштаба импульса тока, то есть области перекрытия падающего и отражённого излучения. Всё это будет справедливо в случае, когда поперечный размер лазерного импульса намного превосходит продольный. Данное условие реализуется во всех известных нам экспериментах по генерации ТГц излучение с поверхности металла ([19, 20, 36] и другие): длительность 50 фс соответствует длине импульса 15 мкм, в то время как диаметр пятна составляет от 1 до 10 мм.

#### Энергия излучения

Пусть падающий оптический импульс имеет гауссову форму по радиальной координате и по времени, тогда его интенсивность на поверхности металла имеет вид:

$$|E_0(z, y, t)|^2 = E_0^2 \exp\left(-\frac{y^2}{a^2} - \frac{z^2}{a_z^2} - \frac{(z - vt)^2}{L^2}\right), \quad (1.23)$$

где  $a$  – поперечный размер лазерного пучка,  $L$  – длина лазерного импульса, малая по сравнению с  $a$ ,  $a_z = a/\sin \alpha$  – продольный размер освещённого пятна на поверхности,  $v = c/\cos \alpha$  – фазовая скорость оптического поля по оси  $z$ . В соответствии с результатом второго раздела, по металлу будет течь поверхностный ток, направленный по оси  $z$ :

$$j_{surf}(x, y, t) = j_0 \exp\left(-\frac{y^2}{a^2} - \frac{z^2}{a_z^2} - \frac{(z - vt)^2}{L^2}\right), \quad (1.24)$$

где максимальное значение тока  $j_0$  определяется выражением (1.7).

Сначала рассмотрим консервативный скин-слой. Считая, что поперечный размер  $a$  намного превосходит длину импульса  $L$ , и интегрируя выражение для потока энергии с единичной площади поверхности (1.16), можно найти полную энергию излучения в низкочастотном импульсе:

$$W = \sqrt{2\pi^5} \frac{a^2 j_0^2}{\omega_p^2 L \sin^2 \alpha \cos \alpha} \quad (1.25)$$

При получении (1.25) учитывалось, что при наличии металла излучение распространяется только в верхнее полупространство. Принимая во внимание выражение для тока (1.7), получаем выражение для полной энергии низкочастотного импульса через характеристики исходного оптического импульса:

$$W = \sqrt{\frac{\pi}{8}} \frac{e^2}{m^2} \frac{a^2}{\omega_0^4 L} |E_0|^4 \cdot \frac{\sin^2 \alpha \cos \alpha}{\left(\frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} \sin^2 \alpha + 1\right)^2}. \quad (1.26)$$

Вид зависимости излучённой энергии от угла падения оптического импульса  $\alpha$  ( $\alpha$  измеряется в радианах,  $\omega_p/\omega_0 = 10$ ) приведён на Рисунке 1.2. Выражение (1.26) достигает максимума, когда выполняется условие  $\sin \alpha = \frac{\omega_0}{\omega_p}$ , при этом энергия равна

$$W_{max} = \frac{1}{8} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{e^2}{m^2} \frac{a^2}{\omega_0^2 \omega_p^2 L} |E_0|^4. \quad (1.27)$$

В случае «полностью» *диссипативного скин-слоя* полная энергия импульса может быть найдена интегрированием спектральной интенсивности низкочастотного излучения по всем частотам, а также по площади излучающего пятна

$$W = \frac{2\pi}{\sigma c \sin \alpha} \iint dz dy \int |j_{surf}(\omega)|^2 \omega d\omega = \frac{\pi}{2} \frac{a^2 j_0^2}{\sigma c \sin^2 \alpha}. \quad (1.28)$$

Или, в исходных обозначениях

$$W = \frac{e^2 \nu a^2}{2cm^2 \omega_0^4} \frac{\sin^2 \gamma \cos^2 \gamma}{\left(\frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} \sin^2 \gamma + 1\right)^2} |E_0|^4. \quad (1.29)$$

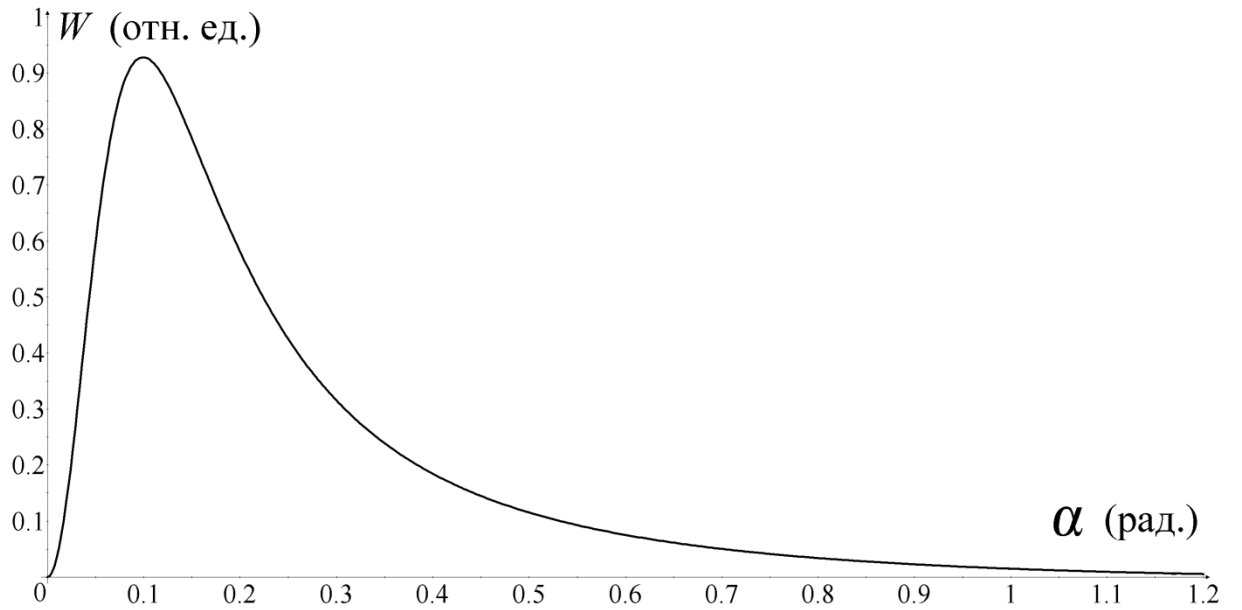


Рисунок 1.2. Теоретическая зависимость полной энергии ТГц излучения от угла падения оптического импульса, отсчитанного от поверхности металла.

Видно, что зависимость энергии низкочастотного импульса от угла падения лазерного излучения одинакова для диссипативного и для консервативного скин-слоя. Найдём соотношение энергий излучения в случае консервативного и диссипативного скин-слоя для лазерного импульса длительности  $T = L/\nu$

$$W_{\text{конс.}} = \frac{1}{\nu T} \sqrt{\frac{\pi}{2}} W_{\text{дисс.}}, \quad (1.30)$$

где энергия  $W_{\text{дисс.}}$  от длительности импульса не зависит. Анализируя формулу (1.30), можно сделать вывод, что при увеличении длительности лазерного импульса и при сохранении его интенсивности энергия низкочастотного излучения сначала спадает как  $T^{-1}$  пока его характерная частота больше частоты столкновений, а затем выходит на постоянное значение  $W_{\text{дисс.}}$  (когда частота столкновений существенно превосходит обратную длительность лазерного импульса).

Кроме того, из формул (1.27)-(1.28) следует, что эффективность генерации низкочастотного излучения в оптимальном режиме обратно пропорциональна концентрации плазмы ( $\sim \omega_p^{-2}$ ) или, в диссипативном случае, обратно пропорциональна проводимости металла. Указанная зависимость была получена в работе [5] для случая

нормального падения оптического импульса на плотную горячую плазму при учёте только пондеромоторного воздействия оптического поля на электронный газ. Данный вывод означает, что более перспективными материалами для генерации ТГц излучения могут стать полуметаллы. Для них характерна концентрация свободных электронов на 2-5 порядков меньше, чем в нормальных металлах, и на 2-3 порядка меньшая эффективная масса носителя заряда [65-67], поэтому при переходе к полуметаллам можно ожидать заметного увеличения энергии генерируемых терагерцевых импульсов.

### Диаграмма направленности и форма импульса в дальней зоне

Перейдём к исследованию излучения низкочастотного поверхностного тока в дальней зоне, т.е. на расстоянии  $R \gg ka^2$  от места отражения лазерного пучка, где  $k$  – характерная величина волнового вектора излучаемого сигнала. Введем сферическую систему координат, где угол  $\theta$  отсчитывается от поверхности металла,  $\varphi$  – от положительного направления оси  $x$ , а расстояние  $R$  – от нулевой точки прежней системы координат. Для нахождения полей воспользуемся методом запаздывающих потенциалов. Векторный потенциал в калибровке Кулона, создаваемый некоторым объёмным током  $\vec{j}(\vec{r}, t)$  в момент времени  $t$ , вычисляется следующим образом:

$$\vec{A}(R, \theta, \varphi, t) = \frac{1}{c} \int_V \frac{\vec{j}(\vec{r}, t - \frac{R}{c})}{R} d^3\vec{r}. \quad (1.31)$$

Однако воспользоваться данным выражением непосредственно довольно сложно, поскольку для этого нужно знать структуру объёмных токов внутри металла. Поэтому сначала мы рассмотрим задачу излучения заданного тока, сосредоточенного в тонком слое в вакууме. Полученный результат будет использован в качестве опорного в задаче об излучении полной системы токов в присутствии металлической плазмы. Для этого удобно применить спектральный подход, дающий простое выражение для фактора ослабления, связанного с объёмными токами, которые текут в металле. Из раздела 1.2 (для бесстолкновительного скин-слоя) нам известна связь Фурье-компонент электромагнитного поля, создаваемого только поверхностным током, и поля в самосогласованной задаче излучения тока на поверхности металла

$$E_z(\omega) = \frac{2i}{\sin \alpha} \frac{\omega_0}{\omega_p} E_z^0(\omega), \quad (1.32)$$

или, для полей  $E_x(t)$ :



$$E_x(t) = \frac{2}{\omega_p \sin \alpha} \frac{\partial}{\partial t} E_z^0(t). \quad (1.33)$$

Таким образом, найдя только поля излучения в опорной задаче, мы сможем с помощью дифференцирования результата вычислить поля излучения всей системы токов в металле.

В дальней зоне для вектор-потенциала (1.31) поверхностного тока (1.24) найдём:

$$A_z^0(R, \theta, \varphi, t) = \frac{\pi j_0 L a_z a}{c R L_{eff}} \exp\left(-\frac{v^2 t^2}{L_{eff}^2}\right), \quad (1.34)$$

где введены следующие обозначения:

$$L_{eff}^2 = L^2 + \beta^2 a_z^2 + \gamma^2 a^2, \quad \gamma = \frac{\cos \theta \sin \varphi}{\cos \alpha}, \quad \beta = 1 - \frac{\cos \theta \cos \varphi}{\cos \alpha}, \quad t = t - \frac{R}{c}$$

Из (1.34) получим электрическое поле во вспомогательной «вакуумной» задаче (здесь приведено выражение для проекции на направление поляризации; в дальней зоне электрическое равно по модулю магнитному):

$$E^0(R, \theta, \varphi, t) = \frac{2\pi j_0 L a_z a \sqrt{1 - \cos^2 \theta \cos^2 \varphi}}{R \cos^2 \alpha L_{eff}^3} \cdot t \exp\left(-\frac{v^2 t^2}{L_{eff}^2}\right). \quad (1.35)$$

Далее, используя соотношение (1.33), вычислим поле в самосогласованной задаче:

$$E(R, \theta, \varphi, t) = \frac{4\pi j_0 L a_z a \sqrt{1 - \cos^2 \theta \cos^2 \varphi}}{\omega_p R L_{eff}^3 \sin \alpha \cos^2 \alpha} \cdot \left(1 - \frac{2v^2 t^2}{L_{eff}^2}\right) \exp\left(-\frac{v^2 t^2}{L_{eff}^2}\right). \quad (1.36)$$

Форма низкочастотного импульса в зоне Фраунгофера, определяемая формулой (1.36), приведена на Рисунке 1.3. Видно, что эффективный продольный размер терагерцового импульса  $L_{eff}$  сильно зависит от направления распространения. В направлении точного черенковского синхронизма она равна длине огибающей исходного лазерного импульса, но уже при небольшой отстройке по углу распространения начинает резко возрастать.

Теперь мы можем определить также и диаграмму направленности излучения поверхностного тока. Проинтегрировав по времени вектор Пойнтинга, получим поток энергии в единицу площади на расстоянии  $R$ :

$$W(R, \theta, \varphi) = \sqrt{\frac{9\pi^3}{2}} \frac{j_0^2}{\omega_p^2 R^2} \frac{(L a_z a)^2 (1 - \cos^2 \theta \cos^2 \varphi)}{L_{eff}^5 \sin^2 \alpha \cos^3 \alpha}. \quad (1.37)$$

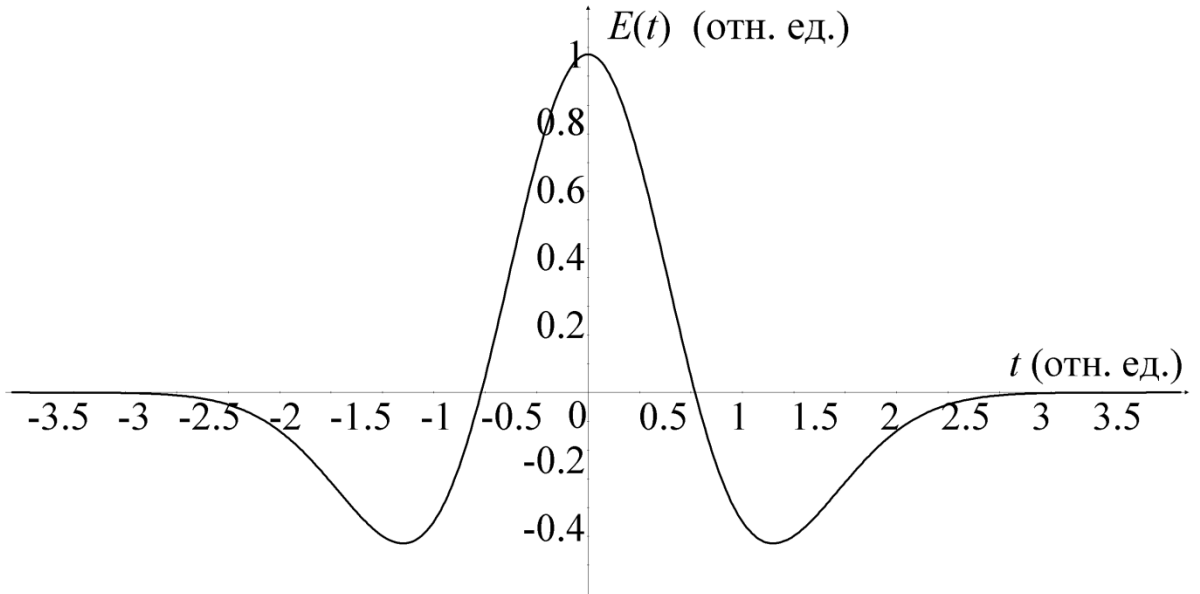


Рисунок 1.3. Временная форма низкочастотного импульса в дальней зоне.

Наконец, полная энергия низкочастотного импульса находится путём интегрирования диаграммы направленности (1.37) по сфере  $R = const$ . Благодаря тому, что поперечный размер лазерного импульса  $a$  (а также размер пятна  $a_z$ ) во много раз превосходит его длину  $L$ , диаграмма направленности имеет резкий максимум в направлении  $\theta = \alpha, \varphi = 0$ : при отклонении от данного направления эффективная длина импульса  $L_{eff}$  быстро возрастает, а поток энергии спадает пропорционально  $L_{eff}$  в пятой степени. Эти свойства диаграммы направленности обусловлены черенковским характером излучения, которое создаётся «волной» приповерхностных токов, движущейся со сверхсветовой скоростью. Интегрирование (1.37) для малых отклонений  $\theta$  от  $\alpha$  и  $\varphi$  от нуля даёт выражение для полной энергии низкочастотного излучения (1.25), полученное ранее по известным полям вблизи поверхности металла.

Если скин-слой в металле нельзя считать полностью консервативным, получить аналитически диаграмму направленности и форму импульса в дальней зоне не удаётся. В этом случае нельзя воспользоваться связью (1.33) между простой опорной задачей об излучении поверхностного тока в вакууме и задачей о возбуждении полей самосогласованной системой токов в металле и на границе. Однако можно утверждать, что форма импульса и диаграмма направленности будет подобна приведённым выше, так как спектр ТГц сигнала изменится незначительно.

## 1.4 Нелинейные токи в гидродинамической модели среды

Рассмотрим процесс формирования нелинейного тока при гидродинамическом описании электронного газа в металле. При формулировке исходных уравнений мы будем следовать многим предыдущим работам [1, 2, 5, 10-12, 14], посвящённым, в том числе, генерации нелинейного тока в металлах на второй гармонике. Особенности рассматриваемого нами случая возбуждения низкочастотного тока связаны с усреднённым по периоду поля воздействием лазерного излучения на электронный газ. Оно приводит к возникновению квазипотенциальных полей в среде в результате непрерывного перераспределения электронов в движущемся неоднородном поле волны. Рассмотрение эффектов такого рода приводит к более реальному описанию структуры приповерхностной области плазмы. В текущем разделе при аналитическом исследовании структуры низкочастотных токов, возбуждаемых в неоднородной среде полем ТМ-волны, мы реализуем метод последовательных приближений в самосогласованной системе уравнений гидродинамики электронного газа и уравнений Максвелла.

### Исходные уравнения

Процесс возбуждения низкочастотных нелинейных токов рассмотрим на основе уравнений гидродинамики электронной жидкости в электромагнитном поле в переменных концентрация  $n$  и электрический ток  $\mathbf{j}$  (где  $\mathbf{j} = nev$ ,  $v$  – скорость электронной жидкости):

$$e \frac{\partial n}{\partial t} = -\text{div } \mathbf{j}, \quad (1.38)$$

$$\frac{\partial \mathbf{j}}{\partial t} + \underbrace{(\mathbf{j} \nabla) \mathbf{v} - ev \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{e}{m} \left( en\mathbf{E} + \frac{1}{c} [\mathbf{j}, \mathbf{H}] \right)} + v\mathbf{j} + \frac{2}{3} e\bar{\varepsilon}_e \nabla n = 0, \quad (1.39)$$

где  $\mathbf{E}$  и  $\mathbf{H}$  – электрическое и магнитное поля,  $\nu$  – частота столкновений электронов (малая по сравнению с оптической частотой),  $\bar{\varepsilon}_e$  – средняя кинетическая энергия электрона в металле, равная по порядку величины энергии Ферми. Возникновение низкочастотного тока в поле лазерного излучения описывается подчёркнутыми в (1.39) нелинейными слагаемыми. Последнее слагаемое в левой части  $\frac{2}{3} e\bar{\varepsilon}_e \nabla n$  введено для учёта давления электронного газа в металле. В текущей главе мы предполагаем, что изменение средней кинетической энергии электронов  $\bar{\varepsilon}_e$  несущественно по сравнению с их осцилляторной энергией.

Специфика рассматриваемой задачи состоит в том, что анализ системы уравнений (1.38)-(1.39) надо проводить для неоднородной среды. Как и выше, будем предполагать, что плазма занимает полупространство  $x < 0$ :

$$n(x) = \begin{cases} n_0, & x < 0 \\ 0, & x > 0 \end{cases} \quad (1.40)$$

Граничные условия для скорости запишем в виде

$$V_x|_{x=0} = 0, \quad (1.41)$$

что соответствовало бы упругому отражению электронов от границы плазма-вакуум при кинетическом рассмотрении задачи.

Положим, что под действием оптического поля в среде в первом приближении возникают движения электронов лишь на оптической частоте: возмущение плотности  $n_1$ , скорости электронного газа  $\mathbf{v}_1$  и электронного тока  $n_0 e \mathbf{v}_1$ ; уравнения для них мы приведём ниже. Тогда из уравнения (1.39) во втором порядке теории возмущений найдём следующее уравнение для низкочастотного тока

$$\frac{\partial \mathbf{j}_2}{\partial t} + \nu \mathbf{j}_2 - \frac{e^2}{m} n_0 \mathbf{E}_2 = -\overline{(\mathbf{j}_1 \nabla)} \mathbf{v}_1 + \frac{e}{mc} \overline{[\mathbf{j}_1, \mathbf{H}]} + e \overline{\mathbf{v}_1} \frac{\partial n_1}{\partial t} + \frac{e}{m} \overline{e n_1 \mathbf{E}} - \frac{2e \bar{\epsilon}_e}{3m} \nabla n_2. \quad (1.42)$$

Здесь черта означает усреднение по оптическому периоду,  $\mathbf{E}$  и  $\mathbf{H}$  – соответственно, электрическое и магнитное поле оптического импульса,  $\mathbf{E}_2 = -\nabla \varphi + \mathbf{E}_T$  – низкочастотное поле (сумма полей разделения зарядов и низкочастотного излучения). Возмущение низкочастотной плотности  $n_2$  связано с током  $\mathbf{j}_2$  соотношением непрерывности, а с полем разделения зарядов  $\nabla \varphi$  – уравнением Пуассона:

$$e \frac{\partial n_2}{\partial t} = -\text{div } \mathbf{j}_2, \quad (1.43)$$

$$\Delta \varphi = -4\pi e n_2. \quad (1.44)$$

Слагаемые с чертой в (1.42) являются источниками низкочастотного тока, возникающими в результате усреднённого воздействия оптического импульса на электронный газ. В уравнении (1.42) введен член  $\nu \mathbf{j}_2$ , отвечающий феноменологическому описанию потерь в металле. Видно, что гидродинамическое описание среды, в отличие от модели Друде, выявляет целый набор низкочастотных источников. Их детальный сравнительный анализ будет проведён в следующем разделе. Сначала получим соотношения для высокочастотных возмущений среды, необходимые в дальнейшем при усреднении (1.42).

## Высокочастотные движения

Для определения поляризации среды, наведенной оптическим импульсом, воспользуемся следующими линеаризованными материальными уравнениями в однородной плазме с концентрацией электронов  $n_0$  ( $e < 0$ )

$$\frac{\partial \tilde{v}_z}{\partial t} = \frac{e}{m} \tilde{E}_z, \quad (1.45)$$

$$\frac{\partial \tilde{v}_x}{\partial t} = \frac{e}{m} \tilde{E}_x - \frac{2}{3} \frac{\bar{\varepsilon}_e}{m n_0} \frac{\partial n_{\sim}}{\partial x}, \quad (1.46)$$

$$\frac{\partial \tilde{E}_x}{\partial t} = 4\pi e n_{\sim}, \quad (1.47)$$

$$\frac{\partial n_2}{\partial t} = -n_0 \operatorname{div} \mathbf{v}, \quad (1.48)$$

где  $x$  – координата точки по нормали к поверхности металла,  $z$  – вдоль поверхности в плоскости падения;  $\tilde{E}_x, \tilde{v}_x, \tilde{E}_z, \tilde{v}_z$  – компоненты электрического поля и скорости осцилляций электрона  $\mathbf{v}$ ,  $n_{\sim}$  – возмущение плотности плазмы в поле падающего излучения.

Дифференцируя уравнение непрерывности (1.48) по  $t$  и делая несложные преобразования с использованием предыдущих соотношений, находим уравнение, описывающее динамику возмущённой концентрации электронов:

$$\frac{\partial^2 n_{\sim}}{\partial t^2} + \omega_p^2 n_{\sim} - v_T^2 \frac{\partial^2 n_{\sim}}{\partial x^2} = 0, \quad (1.49)$$

где  $\omega_p^2 = \frac{4\pi e^2 n_0}{m}$  – плазменная частота,  $v_T^2 = 2\bar{\varepsilon}_e/3m$  – среднеквадратичная скорость электронов. При получении (1.49) мы предположили, что

$$\frac{\partial \tilde{E}_x}{\partial x} \gg \frac{\partial \tilde{E}_z}{\partial z}. \quad (1.50)$$

Как будет показано далее, неравенство выполняется для лазерного излучения с длиной волны, много большей радиуса Дебая (длины экранирования Томаса-Ферми)  $d = v_T/\omega_p$ . Поскольку частота оптического излучения  $\omega_0$  много меньше плазменной частоты  $\omega_p$ , первым слагаемым в (1.49) можно пренебречь. В результате приходим к уравнению

$$d^2 \frac{\partial^2 n_{\sim}}{\partial x^2} - n_{\sim} = 0, \quad (1.51)$$

решение которого показывает, что наиболее сильное возмущение плотности плазмы, наведенное оптическим импульсом, сосредоточено вблизи границы металла на характерном масштабе порядка дебаевского радиуса  $d$ . Экранирование поперечного оптического поля в плазме описывается аналогично и имеет тот же характерный масштаб.

Сравнение с результатами исследований на основе кинетического описания показывает, что уравнение (1.51) определяет структуру плазмы вблизи границы металла с достаточной точностью – до слагаемых порядка  $\omega_0/\omega_p$  [68]. Для дальнейшего описания важно заметить, что благодаря дебаевскому экранированию в рассматриваемой области поперечные к границе осцилляции электронов ослаблены по сравнению с продольными в  $\omega_p^2/\omega^2$  раз, поэтому будем считать

$$\tilde{v}_x \cong 0, \quad (1.52)$$

$$\tilde{E}_x \cong \frac{2}{3} \frac{\bar{\varepsilon}_e}{en_0} \frac{\partial n_{\sim}}{\partial x}, \quad (1.53)$$

для  $x \leq d$ . Вне дебаевского радиуса ( $x > d$ ) пространственную дисперсию можно не учитывать. Для амплитуды осцилляций, как и в случае свободного электрона, приходим к выражению  $\tilde{v}_x = e\tilde{E}_x/im\omega$ .

Связь между компонентами полей  $E_x$  и  $E_z$  на границе раздела металл-вакуум несложно получить из выражения (1.5), описывающего суперпозицию падающей и отражённой волн. Если коэффициент отражения (1.6) близок по модулю к единице, то

$$\frac{\tilde{E}_x}{\tilde{E}_z} \cong i \frac{\omega_p}{\omega_0} \cos \alpha, \quad (1.54)$$

откуда следует, что для углов падения  $\alpha$ , не слишком близких к нормальному, на границе выполняется неравенство  $\tilde{E}_x \gg \tilde{E}_z$ . Вне области дебаевского экранирования объёмный заряд отсутствует, поэтому соотношение между компонентами поля можно определить из соотношения

$$\operatorname{div} \mathbf{E}_{\sim} = 0. \quad (1.55)$$

В этой области ( $x > d$ ), используя уравнения Максвелла, нетрудно получить хорошо известное уравнение

$$\frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{E}}}{\partial x^2} - \frac{\omega_p^2}{c^2} \tilde{\mathbf{E}} = 0, \quad (1.56)$$

решение которого описывает экранирование поля на глубине скин-слоя  $\lambda_c = c/\omega_p$ . Таким образом, поперечное к поверхности оптическое поле экспоненциально спадает от

границы металла на глубине, равной радиусу Дебая, а продольное – на глубине скин-слоя. Поперечное поле при  $x > d$  мало по сравнению с продольными может быть найдено из соотношения (1.55).

### Низкочастотные источники тока

Проведенное выше исследование структуры полей и возмущения параметров среды под действием оптического поля даёт все необходимые сведения для анализа низкочастотного нелинейного тока во втором порядке теории возмущений. Рассмотрим последовательно продольную (вдоль  $z$ ) и поперечную к границе (вдоль  $x$ ) компоненты низкочастотного источника в поле  $p$ -поляризованного лазерного излучения. Проецируя усреднённые по оптическому периоду слагаемые в (1.42) на ось  $z$ , получаем усреднённую силу, действующую на электронный газ вдоль границы:

$$F_z = -\overline{\left(j_x \frac{\partial}{\partial x}\right) \tilde{v}_z} - \overline{\left(j_z \frac{\partial}{\partial z}\right) \tilde{v}_z} + \frac{e}{mc} \overline{j_x H} + e \overline{\tilde{v}_z \frac{\partial \tilde{n}}{\partial t}} + \frac{e}{m} \overline{e \tilde{n} \tilde{E}_z}. \quad (1.57)$$

В приповерхностной области ( $x \leq d$ ), как мы обсуждали выше, поперечную к границе скорость электронов  $\tilde{v}_x$  можно считать равной нулю. Вне области дебаевского экранирования поверхностного заряда ( $x > d$ ) дивергенция электрического поля равна нулю. Отсюда следует, что  $\tilde{v}_x \ll \omega_0 \tilde{v}_z / \omega_p$  и соответствующие слагаемые с  $j_x$  (первое и третье) можно исключить. Сгруппируем оставшиеся в (1.57) слагаемые, используя уравнение движения (1.45):

$$F_z = \frac{\partial}{\partial t} \overline{\tilde{n} \tilde{v}_z} - \frac{en_0}{4} \frac{\partial}{\partial z} |\tilde{v}_z|^2. \quad (1.58)$$

Данные источники низкочастотного тока имеют понятный физический смысл. Первый определяется продольной составляющей оптического поля, которая действует на заряд, индуцированный вблизи поверхности металла поперечным полем. Именно это слагаемое (проинтегрированное в поперечном направлении) обсуждалось при выводе поверхностного тока в модели Друде в разделе 1.1. Второй источник связан с действием усреднённой пондеромоторной силы (для случая  $\tilde{v}_x \ll \tilde{v}_z$ ).

Далее, проецируя усреднённые внешние силы в (1.42) на ось  $x$ , получаем низкочастотную силу, действующую на электроны в перпендикулярном к границе направлении:

$$F_x = -\overline{\left(j_x \frac{\partial}{\partial x}\right) \tilde{v}_x} - \overline{\left(j_z \frac{\partial}{\partial z}\right) \tilde{v}_x} - \frac{e}{mc} \overline{j_z H} + e \overline{\tilde{v}_x \frac{\partial \tilde{n}}{\partial t}} + \frac{e^2}{m} \overline{\tilde{n} \tilde{E}_x} \quad (1.59)$$

Опять же, как и выше, слагаемые, содержащие  $\tilde{v}_x$ , могут быть исключены. Остаются два слагаемых, третье и пятое.

Преобразуем сначала третье слагаемое. Из уравнений Максвелла для оптического поля найдём  $H = \frac{c}{i\omega} \left( \frac{\partial \tilde{E}_z}{\partial x} - \frac{\partial \tilde{E}_x}{\partial z} \right)$ . С учётом уравнения движения (1.45) получим

$$-\frac{e}{mc} \overline{j_z H} = en_0 \overline{\tilde{v}_z \frac{\partial \tilde{v}_z}{\partial x}} - \frac{e^2 n_0}{m\omega} \overline{\tilde{v}_z \frac{\partial E_x}{\partial z}} \quad (1.60)$$

Последнее слагаемое в выражении (1.60) обращается в ноль при усреднении, поскольку компоненты поля  $E_x$  и  $E_z$  сдвинуты по фазе на  $\frac{\pi}{2}$  (см. (1.54)). В результате остаётся только первый член в (1.60):

$$-\frac{e}{mc} \overline{j_z H} = -\frac{en_0}{4} \frac{\partial |\tilde{v}_z|^2}{\partial x}, \quad (1.61)$$

который связан с действием поперечной силы.

Наконец, последнее слагаемое в выражении для поперечной усреднённой силы (1.59) имеет несколько иную природу. Оно характерно лишь для неоднородной среды, поскольку определяется действием поперечной компоненты поля на индуцированный этим полем заряд вблизи поверхности металла. Используя уравнение (1.47), находим

$$\frac{e^2}{m} \overline{\tilde{n} \tilde{E}_x} = \frac{e}{16\pi m} \frac{\partial |E_x|^2}{\partial x}, \quad (1.62)$$

что соответствует одной из компонент максвелловского тензора натяжений и может быть интерпретировано как давление света на полуограниченный электронный газ. Таким образом, наряду с поверхностным источником низкочастотного тока, излучение которого мы исследовали в разделах 1.2 и 1.3 (соответствует первому слагаемому в (1.58)), гидродинамическое описание среды выявляет ещё три низкочастотных источника – продольную и поперечную поперечную силу и давление света (второе слагаемое (1.58), а также (1.61) и (1.62)).

«Новые» усреднённые силы имеют градиентную структуру, то есть зависят от пространственного распределения интенсивности лазерного излучения, и поэтому не могут быть описаны в модели одной частицы. Из вывода видно, что приведённые выражения могут быть получены только при учёте пространственной дисперсии плазмы наряду с временной. В рассматриваемых условиях характерный масштаб «градиентных» источников больше или равен дебаевскому радиусу, и поэтому его вклад ослабляется поляризацией плазмы. Ниже мы перейдём к исследованию низкочастотных возмущений



плотности электронного газа, токов и электромагнитных полей, которые вызваны действием источников тока (1.58), (1.61) и (1.62).

## 1.5 Излучение низкочастотных «гидродинамических»

### ИСТОЧНИКОВ

В текущем разделе будут рассмотрены задачи о возбуждении низкочастотных полей источниками, найденными в предыдущем разделе. В качестве уравнения движения среды будет использоваться уравнение (1.42), представляющее собой усреднённое уравнение Эйлера (1.39), в котором известна внешняя вынуждающая сила (из первого порядка теории возмущений). Сама по себе «градиентная» структура найденных усреднённых сил даёт качественное представление о движении электронного газа вблизи поверхности металла. Силы такого рода приводят к вытеснению электронов из области сильного поля и к возникновению амбиполярного электрического поля разделения зарядов. Поскольку эти силы нестационарны, процесс изменения поляризации плазмы идёт непрерывно и приводит к установлению мгновенного бальцмановского распределения плотности электронного газа в самосогласованном поле. Время установления бальцмановского распределения в плазме равно по порядку величины периоду плазменных колебаний, что значительно меньше длительности оптического импульса. В этих условиях для нахождения излучения градиентных источников (1.58), (1.61) и (1.62) необходимо учесть их слабую нестационарность, по причине которой поля оказываются не полностью потенциальными.

Наконец, задача возбуждения терагерцовых полей является линейной, поэтому излучение каждого из трёх источников тока может быть найдено независимо. Сначала рассмотрим подробно низкочастотные электромагнитные поля источника (1.62) (давление света), а затем по аналогии проанализируем воздействие пондеромоторной силы.

#### «Давление света»

1. Пусть низкочастотный ток возбуждается некоторым поперечным источником  $S_x(x, t - z/v)$ , бегущим со скоростью  $v > c$ . Тогда уравнение движения электронов (1.42) записывается следующим образом:

$$\frac{\partial \mathbf{j}}{\partial t} = \frac{e^2}{m} n_0 \mathbf{E} - \frac{2e \bar{\varepsilon}_e}{3m} \nabla n + x_0 S_x \left( x, t - \frac{z}{v} \right), \quad (1.63)$$

где  $\mathbf{E}$  – полное низкочастотное поле, индекс «2» опущен; все величины зависят от бегущей переменной  $t - z/v$ . Из (1.63) с использованием уравнений Максвелла, для тока внутри металла имеем

$$\text{rot } \mathbf{j} = -\frac{e^2}{mc} n_0 \mathbf{H} - \mathbf{y}_0 \frac{S_x}{v}. \quad (1.64)$$

При этом магнитное поле определяется уравнением

$$\Delta \mathbf{H} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{H}}{\partial t^2} - \frac{4\pi}{c} \text{rot } \mathbf{j}. \quad (1.65)$$

Таким образом, для магнитного поля, возбуждаемого внутри металла источником  $S_x$  справедливо следующее уравнение

$$\Delta H_y = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 H_y}{\partial t^2} + \frac{\omega_p^2}{c^2} H_y + \frac{4\pi \cos \alpha}{c^2} S_x. \quad (1.66)$$

Чтобы учесть «бегущую» структуру токов и полей, перейдём к новым переменным  $z = z$ ,  $\xi = t - z \cos \alpha / c$ , в которых явная зависимость от  $z$  пропадает:

$$\sin^2 \alpha \frac{\partial^2 H_y}{\partial \xi^2} = -\omega_p^2 H_y + c^2 \frac{\partial^2 H_y}{\partial x^2} - 4\pi \cos \alpha S_x. \quad (1.67)$$

Аналогично можно получить уравнение для компоненты электрического поля  $E_x$  внутри металла. Для этого необходимо продифференцировать по времени уравнение Максвелла для  $\text{rot } \mathbf{H}$  и воспользоваться уравнением движения электронов в виде (1.63):

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial \xi^2} - \frac{\partial^2 H_y}{\partial \xi^2} \cos \alpha = -\omega_p^2 E_x + \frac{8\pi e \bar{\varepsilon}_e}{3} \frac{\partial n}{m \partial x} + 4\pi S_x. \quad (1.68)$$

Дальнейшее аналитическое исследование структуры полей вблизи поверхности металла проведём с помощью теории возмущений по малому параметру. Сначала в квазистационарной задаче, на временах  $t \gg \omega_p^{-1}$ , будут найдены квазистатические ближние поля источника  $S_x$ , не выходящие за пределы металла (равные нулю на границе и, следовательно, не дающие вклада в излучение). Для нахождения этих структур положим  $\frac{\partial}{\partial \xi} = 0$ . Как было отмечено выше, данные электромагнитные поля имеют потенциальную структуру и соответствуют больцмановскому распределению электронного газа в силовом поле. Затем будут получены поля излучения, пропорциональные  $\frac{\partial S_x}{\partial \xi}$ , и тем самым являющиеся малой добавкой к ближним полям источника.

2. Поскольку частота терагерцового излучения много меньше плазменной частоты в металле, то уравнения (1.67) и (1.68) можно преобразовать к виду:

$$\frac{\partial^2 H_y}{\partial x^2} - \frac{\omega_p^2}{c^2} H_y = -\frac{4\pi \cos \alpha}{c^2} S_x \quad (1.69)$$

$$-\omega_p^2 E_x + \frac{8\pi e \bar{\varepsilon}_e}{3} \frac{\partial n}{\partial x} = 4\pi S_x. \quad (1.70)$$

В этом же «квазиодномерном» приближении уравнение Максвелла для дивергенции электрического поля даёт

$$\frac{\partial E_x}{\partial x} = 4\pi n e, \quad (1.71)$$

где, по условию сохранения числа частиц, интегральное возмущение концентрации равно нулю. Отсюда находим граничное условие на поперечное электрическое поле:

$$\int_{x=-\infty}^0 \frac{\partial E_x}{\partial x} dx = 0, \quad E_x|_{x=0} = 0. \quad (1.72)$$

Уравнение Максвелла для  $\text{rot } \mathbf{H}$ , с учётом отсутствия тока через границу металла, позволяет получить граничное условие и для  $H_y$ :

$$H_y|_{x=0} = \frac{E_x}{\cos \alpha}|_{x=0} = 0. \quad (1.73)$$

Таким образом, в нулевом приближении  $\frac{\partial}{\partial \xi} = 0$  поля на границе металла равны нулю.

Перейдём теперь непосредственно к рассмотрению «давления света» на электронный газ: в качестве  $S_x$  запишем поперечный источник (1.62) и определим структуру поперечного электрического поля. Подставляя (1.71) и (1.62) в (1.70), получим обыкновенное дифференциальное уравнение для  $E_x$

$$E_x - d^2 \frac{\partial^2 E_x}{\partial x^2} = -\frac{e|E_{x0}|^2}{4m\omega_p^2 d} \exp\left(\frac{2x}{d}\right), \quad (1.74)$$

где  $|E_{x0}|$  – амплитуда поперечного оптического поля на границе металла. Нетрудно найти решение (1.74), дающее нулевое поле на границе металл-вакуум, в виде суммы двух экспонент

$$E_x = \frac{e|E_{x0}|^2}{12m\omega_p^2 d} \left[ \exp\left(\frac{2x}{d}\right) - \exp\left(\frac{x}{d}\right) \right]. \quad (1.75)$$

Видно, что поперечное электрическое поле сосредоточено, в основном, вблизи поверхности металла на расстоянии порядка радиуса Дебая.

Уравнение (1.69) для магнитного поля с источником (1.62) принимает вид:

$$\frac{\partial^2 H_y}{\partial x^2} - \frac{\omega_p^2}{c^2} H_y = -\frac{e|E_{x0}|^2}{4mc^2 d} \cos \alpha \exp\left(\frac{2x}{d}\right). \quad (1.76)$$

Здесь масштабы вынужденного и однородного решения отличаются во много раз (в отличие от (1.74)). Точное решение, с учётом граничного условия (1.73), снова является суммой двух экспонент с различными масштабами (радиус Дебая и глубина скин-слоя):

$$H_y = -\frac{1}{\frac{4c^2}{v_T^2} - 1} \frac{e|E_{x0}|^2}{4m\omega_p^2 d} \cos \alpha \left[ \exp\left(\frac{2x}{d}\right) - \exp\left(\frac{\omega_p}{c} x\right) \right]. \quad (1.77)$$

Отметим, что магнитное поле рассматриваемого источника резко изменяется в приповерхностной области – на глубине, равной радиусу Дебая. Для пояснения этого вывода обратимся к профилю поперечного электрического поля (1.75), который при однократном дифференцировании даёт профиль возмущения электронной плотности (см. уравнение Пуассона). Видно, что концентрация плазмы вблизи границы, как и  $E_x$ , имеет поперечный пространственный масштаб порядка дебаевского радиуса. Значит, приповерхностные токи, возбуждающие магнитное поле, также изменяются с характерным масштабом  $d$ , а ниже (при  $x > d$ ) магнитное поле экранируется обычным образом уже на глубине скин-слоя, в результате чего и формируется профиль.

Построенные решения (1.75) и (1.77) адиабатически медленно, в рамках построенного первого приближения, зависят от координаты  $\xi$  из-за зависимости от  $\xi$  скорости осцилляций в оптическом поле  $|v_0|^2$ . Возникающие в результате этого возмущения полей на границе будут найдены ниже.

3. Остановимся сначала на уравнениях (1.63)-(1.66), описывающих магнитное поле и токи в металле. Уравнение (1.64) и последующие справедливы только внутри металла ( $x < 0$ ), так как при взятии ротора от (1.63) на границе необходимо учитывать скачкообразную зависимость  $n_0(x)$ :

$$\frac{\partial \text{rot } \mathbf{j}}{\partial t} = -\frac{e^2}{mc} n_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} + \frac{e^2}{m} \frac{\partial n_0}{\partial x} E_z \mathbf{y}_0 - ev_T^2 \frac{\partial n}{\partial z} \delta(x) \mathbf{y}_0 - \frac{\partial S_x}{\partial z} \mathbf{y}_0. \quad (1.78)$$

Перейдём к бегущим переменным и сгруппируем члены в (1.78):

$$\frac{\partial \text{rot } \mathbf{j}}{\partial \xi} = -\frac{e^2}{mc} n_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial \xi} + \left[ \frac{e^2}{m} n_0 E_z + v_T^2 \frac{e}{v} \frac{\partial n}{\partial \xi} \right] \delta(x) \mathbf{y}_0 + \frac{1}{v} \frac{\partial S_x}{\partial \xi} \mathbf{y}_0. \quad (1.79)$$

Видно, что выражение (1.79) содержит слагаемое, пропорциональное дельта-функции, которое и учитывает скачок электронной плотности на границе металл-вакуум (см., например, аналогичный вывод в работе [6] и цитированную там литературу). Таким образом, уравнение для магнитного поля, справедливое в обеих средах, получается из (1.69) добавлением соответствующего граничного слагаемого:

$$\frac{\partial^2 H_y}{\partial x^2} - \frac{\omega_p^2}{c^2} H_y = \frac{4\pi \cos \alpha}{c^2} S_x + \frac{4\pi}{c} \left[ \frac{e^2}{m} n_0 \int_{-\infty}^{\xi} E_z(x, t') dt' + v_T^2 \frac{ne}{c} \cos \alpha \right] \delta(x). \quad (1.80)$$

В данное уравнение входит, как видно, поле  $E_z$ , отвечающее за излучение, которое было равно нулю в нулевом приближении. Проинтегрируем (1.80) по  $x$  в малой области вблизи границы, учитывая непрерывность и конечность тангенциального магнитного поля:

$$\left( \frac{\partial H_y}{\partial x} \right)_{x>0} - \left( \frac{\partial H_y}{\partial x} \right)_{x<0} = \frac{4\pi}{c} \left[ \frac{e^2}{m} n_0 \int_{-\infty}^{\xi} E_z(x, t') dt' + v_T^2 \frac{en}{c} \cos \alpha \right]_{x=0}. \quad (1.81)$$

Отсюда нетрудно выразить продольную проекцию электрического поля  $E_z$  при  $x = 0$ , проведя дифференцирование по времени и используя малость терагерцовой частоты относительно плазменной частоты в металле:

$$E_z(\xi) = -\frac{c}{\omega_p^2} \left( \frac{\partial^2 H_y}{\partial \xi \partial x} \right)_{x<0} - \frac{4\pi v_T^2 e}{\omega_p^2 c} \frac{\partial n}{\partial \xi} \cos \alpha. \quad (1.82)$$

Из (1.82) следует, что, как и предполагалось, поле излучения  $E_z$  мало (по сравнению с потенциальными ближними полями) и пропорционально временной производной от найденного квазистатического магнитного поля и возмущения концентрации. Поэтому найдём  $E_z$  в соответствии с теорией возмущений, подставляя в (1.82) полученное выше магнитное поле  $H_y$  и концентрацию  $n$  (выражается через  $E_x$ , см. (1.71)):

$$E_z(\xi) = \left( \frac{3}{2 + v_T/c} - 1 \right) \frac{\partial |E_{x0}|^2}{\partial \xi} \frac{e \cos \alpha}{12mc\omega_p^2}. \quad (1.83)$$

Для более точного сравнения с результатами численного моделирования, здесь был сохранён малый параметр  $v_T/c$  (порядка 0.003 в рассматриваемых металлах).

В работе [9] было проведено численное моделирование конверсии оптического излучения в терагерцовое в рамках гидродинамической модели, рассмотренной в текущей главе. В этих расчётах плазменная частота превосходила оптическую в 10 раз,

лазерный импульс состоял из 10 полных осцилляций поля. На Рисунке 1.4. приведены данные численного моделирования излучения основного источника – первого слагаемого в (1.58). Видно, что магнитное поле терпит скачок на границе металла и спадает в глубине на масштабе скин-слоя. Зависимость магнитного поля вблизи поверхности от продольной координаты повторяет форму временной производной от поверхностного тока (т.е. от огибающей лазерного импульса).

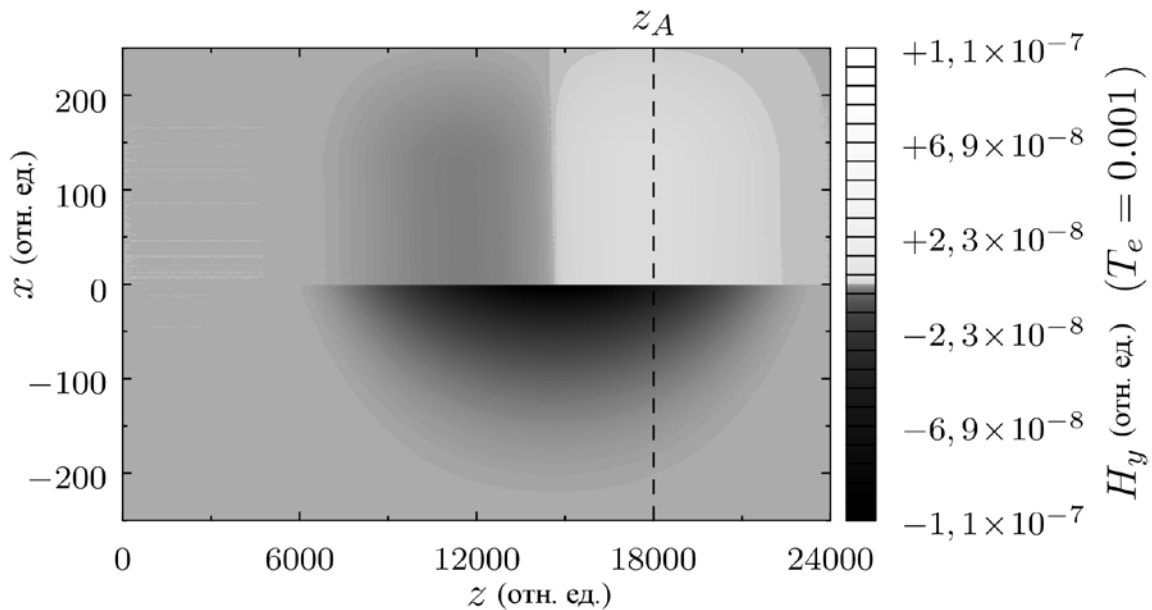


Рисунок 1.4. Пространственное распределение продольного низкочастотного магнитного поля при отражении оптического импульса (данные численного моделирования из работы [9]). Размер области по  $z$  соответствует длине оптического импульса, по  $x$  – глубине скин-слоя. Скачок на границе металл-вакуум происходит на масштабе дебаевского радиуса, который много меньше глубины скин-слоя.

При численном моделировании минимальное значение энергии Ферми электронного газа определялось требованием разрешения дебаевского масштаба на некоторой сетке и составляло  $10^{-3} \cdot mc^2$ ; в реальных металлах энергия Ферми на 1-2 порядка ниже. Моделирование задачи при значениях энергии Ферми в диапазоне  $0.1 - 0.001 mc^2$  показало, что при её снижении численное решение монотонно приближается к аналитическому, соответствующему нулевому значению (см. Рисунок 1.5). Таким образом, при реальных значениях энергии Ферми порядка  $10^{-5} mc^2$  численное решение должно быть практически неотличимым от аналитического.

Теперь, когда известно продольное электрическое поле на границе, магнитное поле легко определить из соотношений между полями в вакууме. Далее можно вычислить вектор Пойнтинга и полную энергию излучения, как это сделано в разделе 1.3. Не

повторяя данные выкладки, перейдём к анализу полей излучения, которые возбуждаются пондеромоторной силой, действующей на электроны при отражении лазерного импульса от металла.

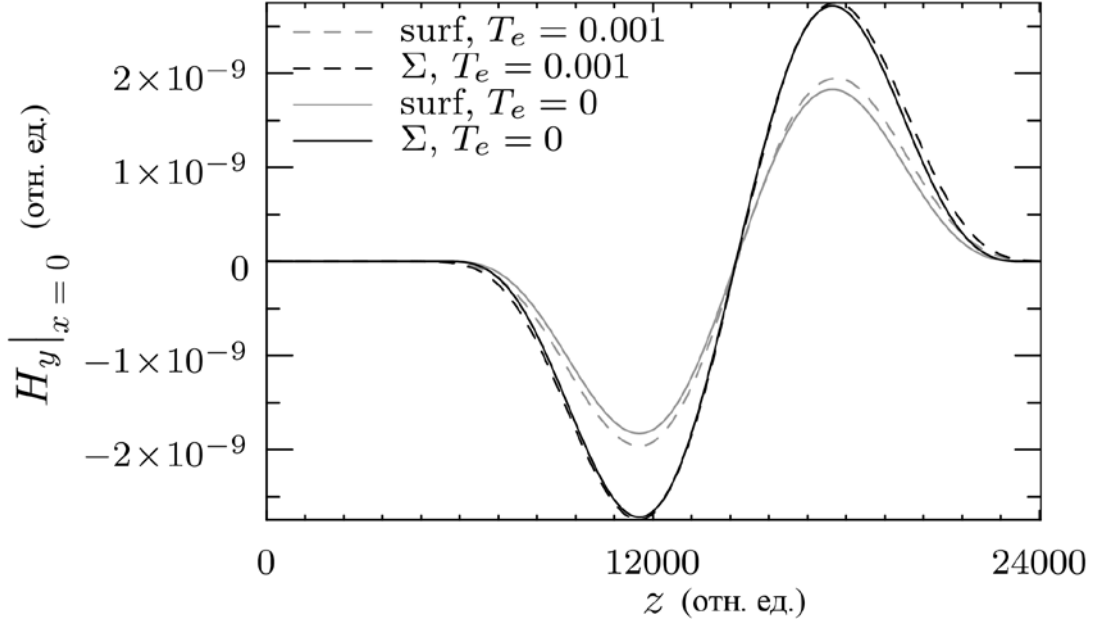


Рисунок 1.5. Временная форма поля  $H_y$  низкочастотного импульса, созданного поверхностным током (1.7) и полной системой низкочастотных источников вблизи поверхности металла. Сплошные кривые – теория (при нулевой средней кинетической энергии электрона), пунктирные – численное моделирование с конечной энергией Ферми. Значение энергии Ферми указано в единицах  $mc^2$ .

### Пондеромоторная сила

Выберем в качестве низкочастотного источника полную пондеромоторную силу лазерного импульса: две её проекции выражаются формулой (1.61) и вторым слагаемым в формуле (1.58). Тогда, в векторной форме, имеем источник

$$\mathbf{S} = -\frac{en_0}{4} \nabla |\tilde{v}_z|^2, \quad (1.84)$$

который при подстановке в уравнение движения (1.63) даёт

$$\frac{\partial \mathbf{j}}{\partial t} = \frac{e^2}{m} n_0 \mathbf{E} - v_T^2 e \nabla n - \frac{en_0}{4} \nabla |\tilde{v}_z|^2. \quad (1.85)$$

Чтобы избежать повторения выкладок заметим, что в однородной среде источник (1.84) не может излучать, поскольку он потенциален и его ротор равен нулю. Поэтому внутри металла уравнения (1.67) и (1.68), с учётом большой длительности импульса по

сравнению с плазменным периодом колебаний, будут описывать экранирование магнитного и электрического поля на глубине скин-слоя и радиуса Дебая соответственно:

$$\frac{\partial^2 H_y}{\partial x^2} - \frac{\omega_p^2}{c^2} H_y = 0, \quad (1.86)$$

$$E_x - d^2 \frac{\partial^2 E_x}{\partial x^2} = 0. \quad (1.87)$$

Однако, благодаря скачку концентрации плазмы в рассматриваемой задаче, источник (1.84) не является потенциальным. Поэтому, как и ранее, возвратимся к исходному уравнению движения электронов (1.85) и вычислим его ротор в случае неоднородной среды, учтя скачкообразную зависимость  $n_0(x)$ :

$$\frac{\partial \text{rot } \mathbf{j}}{\partial t} = -\frac{e^2}{mc} n_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} + \frac{e^2}{m} \frac{\partial n_0}{\partial x} E_z \mathbf{y}_0 + \frac{e}{4} [\nabla n_0, \nabla |\tilde{v}_z|^2]. \quad (1.88)$$

В бегущих переменных (1.88) принимает вид

$$\frac{\partial \text{rot } \mathbf{j}}{\partial \xi} = -\frac{e^2}{mc} n_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial \xi} + \left\{ \frac{e^2}{m} E_z + \frac{e}{4v} \frac{\partial |\tilde{v}_z|^2}{\partial \xi} \right\} n_0 \delta(x) \mathbf{y}_0. \quad (1.89)$$

Здесь, в отличие от аналогичного уравнения (1.80), источник (1.84) в явном виде присутствует в граничном слагаемом, пропорциональном  $\delta$ -функции, что является следствием его непотенциальности на границе металл-вакуум. Уравнение для магнитного поля, справедливое в обеих средах, выглядит теперь следующим образом:

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2} \frac{\partial H_y}{\partial \xi} - \frac{\omega_p^2}{c^2} \frac{\partial H_y}{\partial \xi} = \frac{\omega_p^2}{ec^2} \left[ ce E_z + \frac{\cos \alpha}{4} \frac{\partial m |\tilde{v}_z|^2}{\partial \xi} \right] \delta(x). \quad (1.90)$$

Временной масштаб огибающей лазерного импульса гораздо больше периода плазменных колебаний, поэтому левой частью уравнения можно пренебречь: она имеет второй порядок малости по производной  $\partial/\partial \xi$ , так как само поле излучения  $H_y$  пропорционально этой производной. Интегрируя (1.90) по  $x$ , определяем поле излучения на границе:

$$E_z = -\frac{\cos \alpha}{4ce} \frac{\partial m |\tilde{v}_z|^2}{\partial \xi}. \quad (1.91)$$

Полученное выражение принципиально не отличается от найденных выше формул (1.14) и (1.83), описывающих поле излучения усреднённого продольного поверхностного тока и силы поперечного «давления света» на электронный газ (в частности, все они содержат практически одинаковую зависимость низкочастотного поля от угла падения



оптического импульса). Поэтому будет достаточно легко провести сравнение эффективности всех найденных источников терагерцового излучения друг с другом.

### Относительная эффективность низкочастотных источников

Сравним поля излучения усреднённых источников (1.83) и (1.91), «добавившихся» в гидродинамическом описании, с полем продольного поверхностного тока (1.7), найденного в рамках модели одной частицы в разделе 1.3. Как было сказано выше, источник этого продольного тока в гидродинамическом описании – первое слагаемое в (1.57). Мы не приводим здесь вывод ближних полей и полей излучения этого источника в гидродинамической модели, поскольку изложение повторяло бы выполненные ранее выкладки, не меняя конечный ответ для поля (1.14).

Суммируя результаты раздела, приведём к одинаковому виду низкочастотные поля излучения всех источников, обозначая индексом «surf» электрическое поле поверхностного тока (1.7), индексом «pond» – пондеромоторной силы (1.91) и индексом «pr» – давления света (1.83):

$$E^{surf} = \frac{2e}{mc\omega_0^2} \frac{\sin^2 \alpha \cos \alpha}{\frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} \sin^2 \alpha + 1} \frac{\partial}{\partial \xi} |E_0|^2, \quad (1.92)$$

$$E^{pond} = \frac{e}{mc\omega_0^2} \frac{\sin^2 \alpha \cos \alpha}{\frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} \sin^2 \alpha + 1} \frac{\partial}{\partial \xi} |E_0|^2, \quad (1.93)$$

$$E^{pr} = \frac{e}{6mc\omega_0^2} \frac{\sin^2 \alpha \cos^3 \alpha}{\frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} \sin^2 \alpha + 1} \frac{\partial}{\partial \xi} |E_0|^2. \quad (1.94)$$

Эти формулы показывают, что нелинейный поверхностный ток (1.7), найденный в модели одной частицы, оказывается основным низкочастотным источником:

$$E^{pond} = \frac{1}{2} E^{surf}, \quad E^{pr} = \frac{\cos^2 \alpha}{12} E^{surf}. \quad (1.95)$$

При скользящих углах падения рассмотренные источники дают одинаковый, с точностью до численного коэффициента, вклад в общее излучение. Более того, поля складываются с одинаковым знаком и в суперпозиции увеличивают поле продольного источника  $E^{surf}$  примерно в 1,5 раза. На Рисунке 1.5. приведены полученные в численном моделировании временные формы магнитного поля, создаваемого поверхностным током, а также всеми источниками в сумме. Небольшое различие между результатами

численного моделирования и аналитических расчётов возникает из-за конечной температуры электронного газа. Видно, что с уменьшением температуры наблюдается лучшее совпадение с аналитическими результатами.

## 1.6 Обобщение модели на случай анизотропной среды

Простейшая модель детектирования лазерного импульса на поверхности металла, рассмотренная в Главе 1, допускает обобщение на случай анизотропной проводящей среды. Примером такой среды могут служить полуметаллы (висмут, сурьма и др.), которые обладают металлическими свойствами, однако имеют сравнительно низкую концентрацию свободных электронов (порядка  $10^{18}$ - $10^{19}$  см<sup>-3</sup>) и существенно различающиеся эффективные массы носителей заряда по различным кристаллографическим осям [67]. В данном разделе рассмотрена возможность генерации широкополосного терагерцового (ТГц) излучения при отражении *p*-поляризованного фемтосекундного лазерного импульса от поверхности полуметалла. Проведено обобщение гидродинамической модели мгновенного квадратичного отклика металлов, представлено сравнение аналитических результатов с данными численного моделирования. Показано, что при переходе от хорошо проводящих металлов к полуметаллам следует ожидать значительного увеличения эффективности генерации ТГц сигнала благодаря уменьшению эффективной массы носителя заряда и ослаблению экранировки полей оптического и терагерцового диапазона. Кроме того, в соответствии с развитой моделью, ТГц отклик полуметалла должен быть чувствительным к ориентации монокристаллического образца из-за сильной анизотропии тензора эффективных масс электрона. Тем самым, оптико-терагерцовая конверсия на поверхности полуметаллов может представлять интерес с точки зрения исследования их электродинамических характеристик.

### 1.6.1 Модель линейного отклика полуметалла

Рассмотрим полуметаллический образец, на поверхность которого падает монохроматическое *p*-поляризованное оптическое излучение. Как и в предыдущем разделе, введём систему координат, направив ось *z* вдоль поверхности в плоскости падения, ось *x* – перпендикулярно поверхности, ось *y* – перпендикулярно плоскости падения. Поскольку действительная часть диэлектрической проницаемости  $\epsilon$  на оптических частотах велика по модулю и отрицательна [67], электрическое поле *E* экспоненциально спадает вглубь образца:

$$E_x = E_{x0} \exp(k_0 \sqrt{-\varepsilon} \cdot x - ik_0 \cos \alpha \cdot z), \quad (1.96)$$

$$E_z = E_{z0} \exp(k_0 \sqrt{-\varepsilon} \cdot x - ik_0 \cos \alpha \cdot z), \quad (1.97)$$

где угол падения  $\alpha$  отсчитывается от оси  $z$ ,  $k_0 = \omega/c$  – вакуумное волновое число оптического излучения,  $E_{x0}$  и  $E_{z0}$  – амплитуда волн на границе образца. Коэффициент отражения  $R$ , как и в случае металла, можно представить в виде:

$$R = \frac{\varepsilon \sin \alpha - \sqrt{\varepsilon}}{\varepsilon \sin \alpha + \sqrt{\varepsilon}}, \quad (1.98)$$

Для нахождения нелинейного тока, который образуется в области перекрытия падающего и отражённого оптического импульса, необходимо конкретизировать электродинамическую модель среды. В дальнейшем в качестве примера будет рассматриваться висмут, поскольку в нём полуметаллические свойства проявляются достаточно ярко, а его характеристики хорошо экспериментально изучены и теоретически интерпретированы [65-67].

Диэлектрическая проницаемость висмута определяется поляризационным откликом кристаллической решётки, а также межзонными переходами и внутризонным движением электронов. В дальнейшем мы будем использовать феноменологическую модель линейного отклика, содержащую лишь небольшое число параметров. При их определении мы будем ориентироваться на экспериментально наблюдаемую зависимость диэлектрической проницаемости висмута от частоты в этой области [67]. Внутризонное движение дырок не будет учитываться при получении поляризационного отклика, поскольку их эффективная масса много больше, чем масса электронов.

Поляризационный отклик висмута имеет характерное резонансное поведение вблизи частоты  $\omega_b$ , обусловленное переходами электронов из заполненной валентной зоны или зоны проводимости в лежащую выше пустую зону (характерная разность энергий составляет 1-0,7 эВ, что соответствует частоте  $\omega_b \sim 10^{15} \text{ с}^{-1}$ . Учтём этот вклад, воспользовавшись моделью гармонического осциллятора для описания динамики поляризации среды:

$$\ddot{P} + \nu_b \dot{P} + \omega_b^2 P = \beta E(t), \quad (1.99)$$

где  $\omega_b$  – собственная частота осциллятора,  $P$  – поляризация среды,  $\nu_b$  – эффективная частота потерь,  $\beta$  – коэффициент связи,  $E(t)$  – электрическое поле, точка означает дифференцирование по времени.

Движение частиц внутри зоны проводимости можно описать на основе модели свободных электронов:

$$\dot{r}_f = -\nu_f \dot{r}_f - e \hat{M}_f^{-1} E, \quad (1.100)$$

где  $r_f$  – усреднённая координата электрона,  $\hat{M}_f$  – тензор эффективных масс свободного электрона,  $\nu_f$  – эффективная частота столкновений. Поляризационный отклик, связанный с внутризонным движением электронов, будет важен в дальнейшем при получении нелинейного тока. Ниже мы будем рассматривать оптическое поле, поляризованное в плоскости  $(x, z)$ , предполагая, что соответствующая подматрица  $\hat{M}_f$  диагональна и имеет диагональные компоненты  $m_x$  и  $m_z$ . В случае висмута модель (1.99)-(1.100) приводит к следующей аппроксимации для диэлектрической проницаемости, которая может быть использована в оптическом диапазоне частот:

$$\varepsilon(\omega) = \frac{\beta}{\omega_b^2 - \omega(\omega - i\nu_b)}. \quad (1.101)$$

Формула (1.101) с достаточной точностью воспроизводит экспериментально наблюдаемую комплексную диэлектрическую проницаемость висмута [67] при выборе следующих параметров:  $\omega_b = 1 \times 10^{15} \text{ с}^{-1}$ ,  $\sqrt{\beta} = 9 \times 10^{15} \text{ с}^{-1}$ ,  $\nu_b = 1 \times 10^{15} \text{ с}^{-1}$ .

В первом приближении монохроматическое поле (1.96)-(1.97) вызывает осцилляции свободных и связанных электронов на той же частоте  $\omega$ . Поскольку движение приповерхностных носителей в перпендикулярном к границе направлении оказывается нелинейным, вблизи поверхности возбуждается низкочастотная поляризация.

### 1.6.2 Нелинейный ток и его излучение

Поперечная компонента электрического поля  $E_x$  индуцирует некоторый заряд вблизи поверхности полуметалла. Электроны, локализованные вблизи границы, смещаются продольным электрическим полем лазерного излучения и создают нелинейный поверхностный ток. Как и в предыдущих разделах, для количественного описания этого процесса рассмотрим уравнения гидродинамики в представлении комплексных амплитуд. Изменение концентрации под действием лазерного поля найдём из уравнения непрерывности:

$$i\omega_0 e \delta n = \text{div } j, \quad (1.102)$$

где  $j = -i\omega_0 en_0 r$ ,  $n_0$  – невозмущённая концентрация электронов проводимости,  $r$  вычисляется из уравнения (1.100). Заметим, что поперечная компонента тока  $j_x(x)$  имеет разрыв на границе висмут-вакуум, что отвечает поверхностному заряду, наводимому на поверхности. В тоже время, обе компоненты тока в скин слое создают возмущение заряда. Таким образом, возмущение концентрации записывается в виде суммы:

$$\delta n = -\frac{en_0 e^{-ik_z z}}{\omega_0^2 - iv_f \omega_0} \left[ \frac{E_x|_{x=0}}{m_x} (-\delta(x) - ik_x e^{-ik_x x}) - ik_z e^{-ik_x x} \frac{E_z|_{x=0}}{m_z} \right], \quad (1.103)$$

где  $k_x = k_0 \sqrt{-\varepsilon}$ ,  $k_z = k_0 \cos \alpha$ . Продольный низкочастотный ток может быть получен путём усреднения произведения концентрации и продольной скорости по оптическому периоду. Далее мы будем рассматривать только продольный нелинейный ток, так как именно он вносит основной вклад в излучение с поверхности висмута при конфигурациях эффективных масс (т.е. ориентации кристалла), соответствующих максимальной эффективности генерации ТГц излучения.

Подставляя значения электрических полей на поверхности висмута в выражение (1.103), после усреднения получим окончательно следующее выражение для плотности продольного тока в скин слое:

$$j_{zTHz} = -\frac{e^3 |E_0|^2 n_0 \sin^2 \alpha \cos \alpha |1 - R|^2 \exp(2k_{xIm} x)}{2cm_z (\omega_0^2 + v_f^2)} \left[ \frac{1}{m_x} \left( \delta(x) \frac{k_{xIm}}{k_0^2 |\varepsilon(\omega_0)|} - 1 \right) + \frac{1}{m_z} \right] \quad (1.104)$$

Интегрируя (1.104) по глубине скин-слоя, получим выражение для поверхностного тока:

$$J_{surf} = -\frac{e^3 |E_0|^2 n_0 \sin^2 \alpha \cos \alpha |1 - R|^2}{4cm_z (\omega^2 + v_f^2) k_{xIm}} \left[ \frac{1}{m_x} \left( \frac{2k_{xIm}^2}{k_0^2 |\varepsilon(\omega)|} - 1 \right) + \frac{1}{m_z} \right]. \quad (1.105)$$

В случае фемтосекундного лазерного импульса, длина которого много меньше поперечного размера, нелинейный ток будет появляться в области перекрытия падающего и отражённого оптического излучения, распространяясь вдоль поверхности полуметалла. Как видно из формулы (1.105), в рамках данной модели временная форма тока будет определяться огибающей лазерного импульса.

Поверхностный ток  $J_{surf}$ , «пробегающий» со сверхсветовой скоростью по границе раздела вакуума и полуметалла – среды с большим по модулю  $\varepsilon$  – возбуждает внутри материала систему объёмных низкочастотных токов. Будем считать, что ток создаётся наклонно падающим лазерным импульсом с достаточно широкой апертурой, поэтому

величина  $J_{surf}$  зависит только от «бегущей» координаты  $\xi = t - z \cos \alpha / c$ . Данная геометрия соответствует типичным экспериментальным условиям по генерации ТГц с поверхности металлов (см. [19-21, 36] и др.). Поскольку скорость движения данного источника больше скорости света, создаваемое им излучение имеет черенковский характер.

Задача об излучении найденного поверхностного тока может быть решена аналогично сходной задаче в разделе 1.2, причём полученный выше ответ будет таким же с точностью до малых поправок:

$$E_z = \frac{4\pi}{c\sqrt{-\varepsilon_{THz}}} j_{surf}. \quad (1.106)$$

Магнитное поле над поверхностью полуметалла (в вакууме) находится из уравнений Максвелла:

$$H_y = \frac{E_z}{\sin \alpha}. \quad (1.107)$$

Далее, поток энергии низкочастотного излучения с единицы поверхности (т.е. нормальная компонента вектора Пойнтинга) равен

$$S_x = \frac{c}{4\pi} E_z H_y^* = \frac{4\pi}{c|\varepsilon_{THz}| \sin \alpha} |j_{surf}|^2. \quad (1.108)$$

Для оценки предположим, что падающий оптический импульс имеет гауссову форму по радиальной координате и по времени, то есть его интенсивность на поверхности образца имеет равна

$$|E|^2 = E_0^2 \exp\left(\frac{-y^2}{a^2} - \frac{z^2}{a_z^2} - \frac{\xi^2}{T^2}\right), \quad (1.109)$$

где  $a$  – поперечный размер лазерного пучка,  $T$  – длительность лазерного импульса,  $a_z = a / \sin \alpha$ , причём  $cT \ll a$ . В соответствии с условием черенковского синхронизма, низкочастотное излучение будет сосредоточено в направлении отражения лазерного пучка. Интегрируя по времени и по площади поверхности поток энергии (1.109), можно вычислить полную энергию, излучённую в виде низкочастотного импульса при отражении оптического излучения от полуметалла (для сокращения записи подставлены типичные численные значения для висмута):

$$W_{Bi} \cong \frac{e^6 E_0^4 n_0^2}{c|\varepsilon|\omega^6} a^2 T \left[ \frac{0.77}{m_x m_z} + \frac{1}{m_z^2} \right]^2 \cdot \frac{\sin^2 \alpha \cos^2 \alpha}{(1 + 4 \sin \alpha + 29 \sin^2 \alpha)^2}. \quad (1.110)$$

Отсюда видно, что энергия низкочастотного отклика должна сильно зависеть от ориентации монокристаллического образца (которая определяет величину эффективных масс  $m_z$  и  $m_x$ ).

Полученные выше аналитические результаты сравнивались с численным решением задачи Коши, описывающей падение и отражение лазерного импульса, формирование низкочастотных нелинейных токов и их излучение в виде ТГц импульсов (моделирование выполнено Д.А. Фадеевым, ИПФ РАН, см. работу [58]). Расчёты проводились до достижения стационарного состояния, описывающего черенковский режим генерации и исключающего эффекты включения. Наилучшее совпадение с аналитическим решением для излучённого низкочастотного поля достигается в случае, когда поперечная эффективная масса электронов наибольшая. В этом случае излучение может быть описано только продольными токами. Наибольшая эффективность генерации получается в случаях, когда наименьшая эффективная масса электронов соответствует направлению, определяемому пересечением плоскости падения с поверхностью образца.

Сравним энергию низкочастотного излучения (1.110) для параметров висмута с энергией излучения с поверхности хорошо проводящего металла (золото, медь, алюминий и проч.) в рамках моделей мгновенного квадратичного отклика, рассмотренных в данной главе. При оптимальном угле падения лазерного импульса на металл полная энергия ТГц отклика за счёт мгновенной квадратичной нелинейности описывается выражением:

$$W_{Me} = \frac{9}{32} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{e^2}{m_0^2} \frac{a^2}{\omega^2 \omega_{Me}^2 c T} E_0^4. \quad (1.111)$$

где  $\omega_{Me}$  – плазменная частота электронов в металле,  $m_0$  – масса свободного электрона. Отношение энергий (1.110) и (1.111) для характерной плазменной частоты металла  $\omega_{Me} \cong 20 - 30 \text{ фс}^{-1}$  при длительности лазерного импульса 50 фс составляет порядка  $10^4$ . Таким образом, рассмотренная в Главе 1 модель генерации ТГц излучения предсказывает значительный рост эффективности конверсии из-за существенного уменьшения эффективной массы электрона при переходе от металлов к полуметаллам. Кроме того, экранировка оптического и низкочастотного излучения внутри полуметалла ( $\propto |\varepsilon|^{-3} |\varepsilon_{THz}|^{-1}$ ) может оказаться слабее, чем в нормальном металле ( $\propto (\omega_{Me} T)^{-2}$ ).

## 1.7 Заключение по Главе 1

В первой главе рассмотрен мгновенный квадратичный механизм генерации терагерцового излучения при взаимодействии лазерного импульса с металлами. Проведено аналитическое исследование формирования низкочастотного нелинейного тока в области перекрытия падающего и отраженного лазерного импульса на границе раздела металл-вакуум. Найдена структура электромагнитного поля вблизи поверхности и в «дальней» зоне, определена энергия терагерцового импульса. В рамках рассмотренной модели взаимодействия металла с оптическим полем характерная длительность низкочастотного сигнала равна длительности огибающей лазерного импульса.

Используемая в Главе 1 модель взаимодействия лазерного поля с поверхностью металла сходна с моделью, применяемой в статьях [5, 6]. Аналогичный подход применялся ранее в работах [10-12] при исследовании генерации второй гармоники. Нами был рассмотрен случай падения оптического импульса под произвольным углом и найдена полная система низкочастотных сил, действующих со стороны лазерного поля на электроны в металле. Показано, что гидродинамическая модель среды приводит к более сложной, по сравнению с одночастичной моделью, структуре низкочастотных токов. Тем не менее, сравнение показывает, что модель одной частицы позволяет описать основную часть мгновенного низкочастотного отклика, возникающую в более полном гидродинамическом описании взаимодействия лазерного излучения с поверхностью металла.

Аналитическое решение системы уравнений гидродинамики электронного газа позволило более детально исследовать как структуру низкочастотных полей и токов в металле, так и энергетические характеристики терагерцового излучения. В результате удаётся качественно интерпретировать некоторые особенности генерации ТГц излучения при отражении фемтосекундного лазерного импульса от металла:

1. Эффективной генерации ТГц сигнала следует ожидать только для  $p$ -поляризованного лазерного излучения;
2. ТГц излучение поляризовано в плоскости падения оптического излучения;
3. Зависимость эффективности конверсии от угла падения лазерного импульса имеет немонотонный характер с ярко выраженным максимумом, определяемым



сортом металла (см. теоретические кривые для металлов с разной плазменной частотой на Рисунке 1.6.)

4. Диаграмма направленности низкочастотного отклика имеет максимум в направлении, совпадающем с углом отражения оптического излучения.

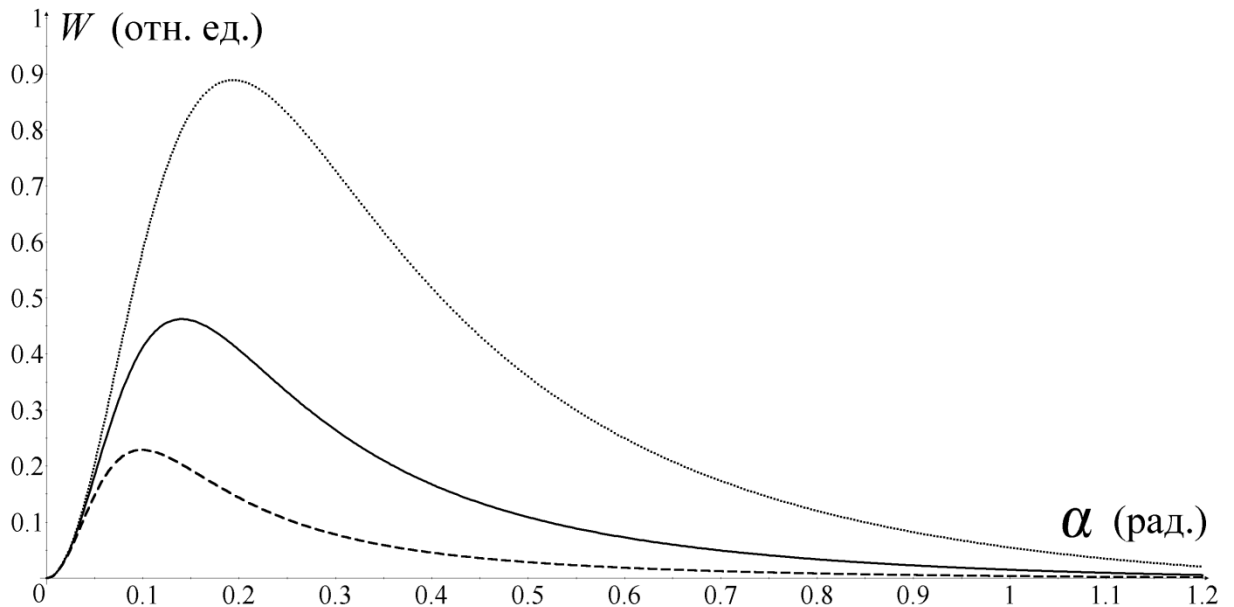


Рисунок 1.6. Зависимость полной энергии ТГц излучения от угла падения (см. формулу (1.26)) оптического импульса для металлов с разной концентрацией электронов проводимости. Сдвиг максимума кривой вправо соответствует уменьшению плазменной частоты. Изображённые графики соответствуют плазменной частоте в металле, в 5, 7 и 10 раз большей частоты падающего лазерного излучения.  $\omega_p = 5\omega$  – мелкий пунктир,  $\omega_p = 7\omega$  – сплошная линия,  $\omega_p = 10\omega$  – пунктир.

Теоретическая зависимость энергии ТГц излучения от угла падения оптического импульса (1.26) хорошо описывает известные нам экспериментальные данные [19, 20, 36, 41]. Монотонный график зависимости  $W(\alpha)$ , полученный экспериментально в работе [19] чешского коллектива, не охватывает наиболее интересный диапазон малых скользящих углов, в котором наблюдается максимальная эффективность генерации (см. [36, 41]).

Необходимо отметить выводы теоретической модели о том, что при переходе от хорошо металлов к полуметаллам следует ожидать значительного увеличения амплитуды низкочастотного отклика за счёт снижения эффективной массы носителя заряда и ослабления экранировки электромагнитных полей. Кроме того, модель предсказывает сильную зависимость энергии ТГц сигнала от эффективной массы электрона по направлениям  $x$  и  $z$ , то есть от ориентации монокристаллического образца.

Очевидны также и недостатки использованного подхода, связанные, прежде всего, с мгновенным характером нелинейного отклика среды. В данной модели низкочастотные поля, генерируемые на поверхности металла, имеют примерно ту же длительность, что и падающий лазерный импульс – от 50 до 100 фемтосекунд. Однако экспериментальные данные свидетельствуют о генерации ТГц импульсов длительностью порядка 1 пикосекунды, что более чем на порядок превышает теоретическое значение. Кроме того, значение энергии ТГц импульса в моделях с мгновенным квадратичным откликом оказывается существенно меньше наблюдаемого в эксперименте.

## Глава 2. Тепловая нелинейность

Несмотря на малую длительность рассматриваемых лазерных полей, в процессе отражения электронный газ в металле заметно нагревается в результате упругого рассеяния на фононах и дефектах кристаллической решётки [1, 3, 4]; в приложении к взаимодействию лазерного излучения с металлами сопутствующие кинетические процессы довольно детально исследованы. Нетрудно оценить, что в простейшей модели Друде средняя энергия  $\delta\varepsilon_e$ , получаемая электроном от поля за время действия лазерного импульса  $\tau_p$ , составляет

$$\delta\varepsilon_e(x, z) \approx \frac{e^2 E_z^2(x, z)}{2m(\omega^2 + \nu^2)} \cdot \nu\tau_p, \quad (2.1)$$

где  $E_z$  – амплитуда продольного к поверхности металла электрического поля,  $\omega$  – оптическая частота,  $\nu$  – эффективная частота столкновений,  $e$  и  $m$  – абсолютная величина заряда и масса электрона соответственно. Как было отмечено выше, величина  $\delta\varepsilon_e$  в  $\nu\tau_p$  раз превышает пондеромоторный потенциал (на 1-2 порядка в случае металлов), вследствие чего в типичных экспериментальных условиях необходимо учитывать в первую очередь именно тепловые нелинейные эффекты. Другой важной особенностью тепловой нелинейности является инерционность отклика. Тем не менее, тепловой механизм генерации был предложен значительно позже моделей, основанных на пондеромоторном воздействии лазерного импульса.

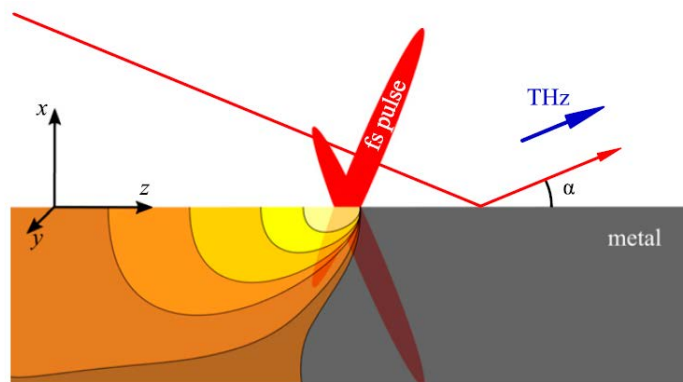


Рисунок 2.1. Общая схема генерации ТГц отклика тепловой волной на поверхности металла

В настоящей главе обсуждается роль тепловой нелинейности в процессе генерации низкочастотных полей вблизи поверхности металла под действием фемтосекундных

лазерных импульсов. В рамках данной модели низкочастотная поляризация металла возникает при вытеснении электронов из нагретой области, которая перемещается вдоль поверхности по мере отражения лазерного импульса. В первом разделе будет описана типичная геометрия эксперимента и рассмотрена электродинамическая задача излучения «тепловой волны» с известным распределением средней энергии электронов, движущейся вдоль поверхности металла. Далее получены выражения для электрического и магнитного поля излучения, найден поток энергии. Во втором разделе на базе модели Друде и уравнения теплопроводности найдены основные параметры ТГц излучения для заданных характеристик металла, для сравнения приведены данные численного моделирования из работы [62]. Конец главы посвящён сопоставлению теоретических результатов с экспериментальными данными.

## 2.1 Низкочастотная динамика электронов.

Взаимодействие лазерного импульса с поверхностью металла с учётом нагрева схематически изображено на Рисунке 2.1. Геометрия рассматриваемого процесса повторяет геометрию, рассмотренную в первой главе: как уже отмечалось, большинстве известных экспериментов длина лазерного импульса составляет 10-30 мкм (30-100 фс), а диаметр пучка на поверхности металла – от 1 до 10 мм. Оптимальный для генерации угол падения  $\alpha$  равен 5-10 градусам (от поверхности). Отсюда следует, что в процессе отражения импульса по металлу с фазовой скоростью  $c/\cos \alpha$  перемещается короткая освещённая область («световой зайчик»), оставляющая за собой приповерхностное возмущение температуры электронов. Сверхсветовая фазовая скорость распространения возмущения плотности среды приводит к черенковскому характеру возникающего электромагнитного излучения.

При теоретическом исследовании движения электронного газа в металле мы применяем гидродинамическое описание, как и в предыдущей главе. Базовыми являются те же уравнения низкочастотного движения среды и уравнение состояния, что и в Главе 1, однако теперь в качестве основного источника низкочастотной поляризации рассматривается градиент давления электронного газа:

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} = -\frac{1}{mn} \nabla p - \frac{e\mathbf{E}}{m} - \mathbf{v}\mathbf{v}, \quad (2.2)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\text{div } n\mathbf{v}, \quad (2.3)$$

$$p = \frac{2}{3} n \varepsilon_e. \quad (2.4)$$

Также в систему основных уравнений входят уравнения Максвелла:

$$\operatorname{rot} \mathbf{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} - \frac{4\pi}{c} n e \mathbf{v}, \quad (2.5)$$

$$\operatorname{rot} \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t}, \quad (2.6)$$

$$\operatorname{div} \mathbf{E} = -4\pi e \cdot \delta n, \quad (2.7)$$

где  $n, p$  – концентрация и давление электронного газа,  $\delta n = n - n_0$  – возмущение концентрации,  $\mathbf{H}$  – напряжённость магнитного поля,  $c$  – скорость света в вакууме. В рассматриваемой задаче уравнение состояния электронного газа (2.4) удобнее всего записать именно в таком универсальном виде [69]. Уравнение (2.2) не содержит магнитного поля, поскольку скорость движения электронов много меньше  $c$ . Также мы не учитываем нелинейные гидродинамические члены вида  $(\mathbf{v}\nabla)\mathbf{v}$ , так как их вклад уже был подробно рассмотрен в предыдущей главе; далее мы будем считать, что кинетическая энергия упорядоченного движения электронов много меньше тепловой энергии. Предполагается, что над поверхностью металла находится вакуум или среда с показателем преломления, близким к единице.

Вычисляя дивергенцию уравнения (2.2) и принимая во внимание (2.3), (2.7) и (2.4), находим в первом порядке теории возмущений по  $\delta n$ :

$$\frac{\partial^2 \delta n}{\partial t^2} + \nu \frac{\partial \delta n}{\partial t} + \omega_p^2 \delta n - \frac{2\varepsilon_F}{5m} \Delta \delta n = \frac{2n_0}{3m} \Delta \varepsilon_e, \quad (2.8)$$

где  $\omega_p^2 = 4\pi n_0 e^2 / m$  – плазменная частота,  $\varepsilon_F$  – энергия Ферми в металле, знаком  $\Delta$  обозначен оператор Лапласа. Величина  $d = \sqrt{2\varepsilon_F / 5m\omega_p^2}$ , радиус экранирования Томаса-Ферми, определяет глубину проникновения в металл поперечного к поверхности электрического поля. Уравнение (2.8) описывает низкочастотное возмущение плотности электронного газа с учётом неоднородного нагрева и полей разделения заряда. Плазменная частота в большинстве металлов имеет величину порядка  $(1 \div 2) \cdot 10^{16} \text{ с}^{-1}$ . Поэтому отклик металла в терагерцовом диапазоне (частота  $\sim 10^{12} - 10^{13} \text{ с}^{-1}$ ) с высокой точностью описывается квазистатическим приближением в уравнении (2.8) без учёта пространственной дисперсии:

$$\delta n = \frac{1}{6\pi e^2} \Delta \varepsilon_e. \quad (2.9)$$

Квазиэлектростатическое приближение в уравнениях (2.6)-(2.7) в совокупности с (2.9) даёт следующее выражение для электрического поля:

$$\mathbf{E} = -\frac{2}{3e} \nabla \varepsilon_e, \quad (2.10)$$

что является условием локального равновесия электронного газа в уравнении (2.2):

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} = 0.$$

На границе раздела сред  $E_x$  равно нулю, а продольное электрическое поле  $E_z$  остаётся непрерывным, поэтому выражение (2.10) позволяет найти электрическое поле непосредственно над поверхностью металла:

$$E_z(x=0, z, t) = -\frac{2}{3e} \left. \frac{\partial \varepsilon_e(x, z, t)}{\partial z} \right|_{x=0}. \quad (2.11)$$

Учёт в уравнении (2.8) пространственной дисперсии, то есть члена, пропорционального лапласиану  $\delta n$ , приводит к умножению решения (2.11) на фактор  $(1 - d/L_{\varepsilon_e})$ . Здесь  $L_{\varepsilon_e}$  – масштаб изменения тепловой энергии  $\varepsilon_e(x)$ , превосходящий радиус экранирования Томаса-Ферми более, чем на порядок. Формула (2.11) показывает, что низкочастотное поле над поверхностью металла определяется лишь распределением тепловой энергией электронов на поверхности  $\varepsilon_e(x=0, z, t)$  и не зависит от динамики электронов в глубине металла. Отметим, что аналогичная формула для низкочастотного электрического поля получена в первой главе в условиях мгновенного квадратичного отклика приповерхностных электронов без учёта нагрева: выражения (1.92)-(1.94), сходные с (2.11), содержат осцилляторную энергию электрона в лазерном поле вместо тепловой. Данные численного решения системы (2.2)–(2.7), приведённые в работе [62], подтверждают полученные аналитические результаты, в частности – хорошую точность приближённой формулы (2.11). Хорошее совпадение численных и аналитических результатов свидетельствует о корректности использованных приближений.

В рассматриваемой геометрии низкочастотное магнитное поле непосредственно над металлом может быть найдено из уравнения (2.5):

$$H_y(+0, z, t) = \frac{E_z(+0, z, t)}{\sin \alpha}. \quad (2.12)$$

Тогда, интегрируя поток электромагнитной энергии с поверхности металла и используя формулу (2.12), получаем выражение для полной энергии терагерцового сигнала:

$$W_{THz} \cong \frac{c}{9e^2 \sin \alpha} \int \int \left( \left. \frac{\partial \varepsilon_e(z, y, t)}{\partial z} \right|_{x=0} \right)^2 dt dS, \quad (2.13)$$

где интегрирование проводится по времени, в течение которого на поверхности металла существует продольный градиент температуры и по площади, освещаемой лазерным импульсом. Таким образом, при достаточно общих предположениях относительно процессов нагрева и распространения тепла в среде удаётся получить аналитические выражения для терагерцового поля излучения. В следующем разделе выполнена оценка времени перераспределения тепла с использованием уравнения теплопроводности, которая позволяет найти аналитическую зависимость энергии терагерцового излучения от характеристик металла.

## 2.2 Модель теплопереноса

Исследование генерации ТГц излучения при лазерном нагреве среды сводится к решению уравнений гидродинамики (2.2)-(2.4) и уравнений Максвелла (2.5)-(2.7), в которых средняя энергия электронного газа  $\varepsilon_e$  определяется интенсивностью оптического излучения. В случае фемтосекундного лазерного импульса задача нагрева среды заметно упрощается. Из-за большой разницы масс электронов и ионов кристаллической решётки поглощённая энергия запасается в электронной подсистеме в приповерхностной области металла, что приводит к сильному нарушению термодинамического равновесия. Сходная ситуация имеет место и при лазерной абляции металлов (в течение первых пикосекунд) [1, 3, 4]. Следуя работам [3, 4, 15], в которых рассматриваются аналогичные процессы транспорта тепла в металлах, в численном моделировании и аналитических оценках мы используем уравнение теплопроводности, учитывающее джоулев нагрев электронов в оптическом поле:

$$\frac{\partial \varepsilon_e(t, x, z)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 \varepsilon_e(t, x, z)}{\partial x^2} + \frac{e^2 E_z^2(t, x, z) \nu}{2m(\omega^2 + \nu^2)}, \quad (2.14)$$

где  $D$  – коэффициент температуропроводности металла. Уравнение не содержит производных по продольной координате  $z$ , так как соответствующие масштабы распределения температуры много больше скин-слоя и длины свободного пробега. Время релаксации тепла из слоя толщины  $l$  после воздействия лазерного излучения составляет

$$\tau \approx \frac{l^2}{D}, \quad (2.15)$$

что для параметров меди даёт порядка 0,3 пс. Заметим, что для других хорошо проводящих металлов оценка времени охлаждения поверхностного слоя электронов может давать от десятков фемтосекунд до одной пикосекунды (при использовании параметров материала без дефектов при комнатной температуре). Как будет указано далее, частота столкновений электронов должна достаточно заметно возрастать при их нагреве, что может существенно замедлять теплоперенос.

В уравнение (2.14) не включена релаксация тепла в кристаллическую решётку, поскольку в рассматриваемых материалах она происходит не быстрее, чем перераспределение тепла в электронной подсистеме – за несколько пикосекунд [1, 3, 4]; конкретный механизм охлаждения приповерхностных электронов для нахождения низкочастотного отклика будет непринципиален. В любом случае, рассмотрение процессов нагрева и теплопереноса приводит к появлению нового временного масштаба, близкого к экспериментально наблюдаемой длительности ТГц импульсов [19, 20]. Заметим, что в случае большой длины свободного пробега электрона или при больших значениях тепловой энергии уравнение теплопроводности (2.14) неточно описывает начальную стадию распространения тепла (более подробно о теплопроводности металлов с горячими электронами см., например, [15]).

### **Сравнение с экспериментальными данными**

Оценим энергию, содержащуюся в спектральном диапазоне ниже 2 ТГц – именно с таким ограничением работают системы детектирования в типичных экспериментальных условиях. Для этого рассмотрим низкочастотное электрическое поле после прохождения лазерного импульса. Для оценки интеграла (2.13) по времени и производной по  $z$  будем использовать характерное время релаксации тепла (2.15) и связанный с ним продольный масштаб температуры  $l_z = \tau c / \cos \alpha$ . В результате получим:

$$W_{THz} \cong 4\pi^2 c \frac{Da^2 \varepsilon_e^2 \cos^2 \alpha}{9e^2 l_{skin}^2 \sin^2 \alpha}. \quad (2.16)$$

где  $l_{skin}$  – толщина скин-слоя. Рассматриваемая модель позволяет также найти зависимость энергии ТГц излучения от угла падения лазерного импульса, оптической и плазменной частоты. Для этого необходимо подставить в выражение (2.16) тепловую энергию электрона (2.1). Амплитуда продольного лазерного поля на поверхности металла  $E_z(x=0)$  может быть получена из решения задачи о линейном отражении оптического импульса, как и в предыдущей главе. Как было указано выше, в случае  $p$ -



поляризованного лазерного излучения коэффициент отражения  $R$  от среды с большой диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon$  равен

$$R = \frac{\varepsilon \sin \alpha - \sqrt{\varepsilon}}{\varepsilon \sin \alpha + \sqrt{\varepsilon}},$$

где при условии  $\nu, \omega \ll \omega_p$

$$\varepsilon \cong -\frac{\omega_p^2}{\omega(\omega - i\nu)}. \quad (2.17)$$

При том же условии глубина скин-слоя составляет  $l_{skin} = c/\omega_p$ . После подстановки из выражения (2.16) получаем:

$$W_{THz} \cong \frac{(16\pi)^3 \omega_p^2 \nu^2 D e^2 W_{opt}^2}{9 \omega^4 c a^2 m^2 c^4} \frac{\sin^2 \alpha \cos^2 \alpha}{\left(\frac{\omega_p^2}{\omega^2} \sin^2 \alpha + 1\right)^2}. \quad (2.18)$$

где  $W_{opt}$  – энергия лазерного импульса. Формула (2.18) позволяет вычислить энергию терагерцового излучения по известным характеристикам металла и исходным параметрам лазерного импульса (энергия  $W_{opt}$  и радиус пучка  $a$ ). Угловая зависимость, описываемая выражением (2.18), совпадает с полученной ранее для пондеромоторного воздействия оптического поля и хорошо аппроксимирует экспериментальную кривую (см. подробнее в первой главе). Максимальная эффективность генерации также достигается при  $\sin \alpha = \omega/\omega_p$ :

$$W_{THz}^{Max} \cong 2 \frac{(8\pi)^3 \nu^2 D e^2}{9 \omega^2 c a^2} \left[ \frac{W_{opt}}{m c^2} \right]^2. \quad (2.19)$$

При подстановке используемых в эксперименте [36] параметров лазерного импульса в условиях наиболее сильной фокусировки (плотность энергии 80 мДж/см<sup>2</sup>) и параметров меди выражение (2.19) даёт значения около 250 пДж, что хорошо соответствует экспериментальному значению.

Необходимо также обратить внимание на пространственную нелокальность терагерцового отклика металла, которая следует из тепловой модели генерации. Если толщина облучаемого образца меньше, чем глубина скин-слоя (или длина свободного пробега электрона – зависимости от их соотношения), то генерация терагерцовых полей должны быть подавлена. В этом случае фольга нагревается одинаково по всей толщине, после прохождения лазерного импульса уже не возникает градиент температуры, и, в соответствии с (2.11)-(2.12), не появляются поля излучения. Данный вывод позволяет

интерпретировать экспериментальные данные, полученные при работе с золотой фольгой [20]: генерация пропадает при толщине фольги менее 100 нм, что примерно соответствует длине свободного пробега электрона в чистых образцах золота.

Существенная разница терагерцового отклика на *s*- и *p*-поляризованный лазерный импульс объясняется различием в линейном коэффициенте отражения: для *s*-поляризованной волны он равен

$$R_s = \frac{\varepsilon - \sqrt{\varepsilon} \sin \alpha}{\varepsilon + \sqrt{\varepsilon} \sin \alpha}. \quad (2.20)$$

Используя такой коэффициент отражения, можно получить угловую зависимость  $W_{THz}(\alpha)$ , максимум которой достигается при угле  $\alpha$ , равном 45 градусам, что и наблюдается в экспериментах. При условии  $\nu \ll \omega \ll \omega_p$  максимальное значение энергии ТГц импульса для *s*-поляризованного оптического излучения оказывается в  $\omega_p^2/\omega^2$  раз меньше, чем для *p*-поляризованного.

### 2.3 Обобщение на случай непостоянной частоты столкновений

В данном разделе приведено обобщение теплового механизма генерации ТГц излучения на случай частоты столкновений электронов, зависящей от температуры. Обобщённая модель позволяет предложить новый метод экспериментального исследования кинетики электронов в металлах; насколько известно автору, наиболее близкое предложение было высказано ранее в работе [13], однако использование ТГц отклика металла на воздействие лазерных импульсов как средства диагностики ранее не обсуждалось. Метод позволяет проводить косвенные измерения зависимости частоты столкновений электронов от их температуры (до нескольких эВ) в кристаллической решётке комнатной температуры. Далее будет рассмотрена конкретная зависимость частоты столкновений от температуры и проанализирована возможность измерения числового коэффициента, определяющегося зонной структурой металла и отвечающего за интенсивность электронного рассеяния

В целом тема представляется весьма актуальной, поскольку количественные характеристики рассеяния электронов в металлах исследованы недостаточно и существенно разнятся в зависимости от источника [3, 4, 15, 70-72]. 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.

В данном разделе мы будем опираться на полученное выше решение для низкочастотного поля излучения, порождаемого движущимся распределением температуры (2.11):

$$E_z = -\frac{2}{3e} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z}, \quad (2.21)$$

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  $\partial/\partial z$  берётся на границе раздела. Из этого выражения 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). Таким образом, определение временной формы терагерцового импульса может служить средством экспериментального наблюдения динамики нагрева и релаксации тепла в приповерхностной области металла.

### Нелинейный нагрев электронов

Для вырожденного электронного газа в металле необходимо различать такие параметры как средняя кинетическая энергия  $\varepsilon$  и температура  $T$ . Далее мы будем считать изменение средней энергии электрона за счёт нагрева малым по сравнению с энергией Ферми  $\varepsilon_F$ , что обычно справедливо при неразрушающем воздействии [1, 3, 4]. В этом случае средняя энергия электрона  $\varepsilon$  является квадратичной функцией температуры электронного газа [73]:

$$\varepsilon \cong \frac{3}{5} \varepsilon_F \left( 1 + \frac{5\pi^2 T^2}{12 \varepsilon_F^2} \right), \quad (2.22)$$

а теплоёмкость  $C$  линейно зависит от температуры:

$$C = \frac{\pi^2 T}{2 \varepsilon_F}. \quad (2.23)$$

Также будем считать, что длина свободного пробега электрона мала по сравнению с глубиной прогрева металла и релаксацию тепла можно описывать уравнением теплопроводности с источником:

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} = \frac{e^2 E_t^2}{2m\omega^2} \nu + \frac{\partial}{\partial x} \left( D \frac{\partial \varepsilon}{\partial x} \right). \quad (2.24)$$

Предполагается, что частота столкновений  $\nu$  много меньше оптической частоты  $\omega$ , а масштаб распределения тепловой энергии вдоль поверхности металла намного превосходит поперечный масштаб.

Рассмотрим широко используемую модель нагрева электронного газа, в которой суммарная частота столкновений  $\nu$  складывается из частот электрон-электронных и электрон-фононных столкновений [64]:

$$\nu \cong \nu_{ph} \frac{T_{lat}}{T_0} + a \frac{T^2}{\hbar \varepsilon_F}, \quad (2.25)$$

где  $\nu_{ph}$  – частота электрон-фононных столкновений при начальной температуре  $T_0$ ,  $T_{lat}$  – текущая температура кристаллической решётки,  $T$  – температура электронов,  $a$  – численный коэффициент, зависящий от зонной структуры металла. Первое и второе слагаемое в выражении (2.25) описывают частоту электрон-фононных и электрон-электронных столкновений соответственно. В данном случае имеются в виду электрон-электронные столкновения, в которых не сохраняется импульс (о столкновениях с перебросом см. подробнее [64]). Здесь и далее мы считаем, что рассеяние на примесях и дефектах кристаллической решётки несущественно.

Особенности воздействия фемтосекундных лазерных импульсов на металлы связаны с переходом облучаемой системы в неравновесное двухтемпературное состояние, когда электроны сильно нагреты, а решётка сохраняет прежнюю температуру. Если лазерный импульс имеет длительность 30–50 фемтосекунд, то процессы нагрева и перераспределения тепла в большинстве случаев можно рассматривать отдельно друг от друга, считая при этом температуру кристаллической решётки  $T_{lat}$  постоянной и равной  $T_0$ .

Излучаемый сигнал (2.21) генерируется до тех пор, пока электронная подсистема в некоторой точке поверхности не пришла в равновесие, и должен включать два характерных временных масштаба: время нагрева (длительность лазерного импульса) и время релаксации тепла. Как уже было отмечено, в условиях обсуждаемых экспериментов [19, 20, 36, 41] диапазон измерения приборов был ограничен сверху частотой порядка 1,5–2 ТГц, поэтому в дальнейшем расчёт энергии низкочастотного импульса будет приводиться именно для этой части спектра.

С учётом температурной зависимости (2.25) уравнение (2.24) для нагрева электронов в оптическом скин-слое будет выглядеть следующим образом:

$$\frac{\partial \Delta \varepsilon}{\partial t} = \left( \nu_{ph} + \frac{4a}{9\pi^2} \frac{\Delta \varepsilon}{\hbar} \right) \frac{e^2 E_\tau^2(t)}{2m\omega^2}, \quad (2.26)$$

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

$$\Delta \varepsilon(t) = \frac{3\pi^2}{4a} \hbar \nu_{ph} \left[ \exp \left( \frac{2a}{9\pi^2 \hbar} \int_{-\infty}^t \frac{e^2 E_\tau^2(t)}{m\omega^2} dt \right) - 1 \right]. \quad (2.27)$$

Выражение (2.27), 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<sup>2</sup> [36], при этом тепловая энергия электронов может возрасти 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 по-прежнему рассматривать уравнение диффузионного типа, используя не зависящий от температуры электронов коэффициент температуропроводности  $D = v_F^2 / 3\nu_\lambda$ , где  $\nu_\lambda$  – эффективная частота столкновений электронов, определяющая длину свободного пробега и не совпадающая в общем случае с  $\nu$ . Это предположение справедливо пока основной вклад в  $\nu_\lambda$  вносят электрон-фононные столкновения, которые рассматриваемых металлах имеют частоту порядка  $10^{14} \text{ с}^{-1}$ .

### Возможности диагностики среды

Перейдём к определению энергии низкочастотного сигнала (2.21), 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 мы заменим интегрирование по времени умножением на длительность лазерного импульса  $\tau_p$ . Аналогично будем использовать характерную длительность излучаемого сигнала  $\tau$  и площадь лазерного пучка  $S$ . Подставляя выражение (2.27) в формулу (2.21), получим

следующую оценку для предельного случая высоких интенсивностей (экспонента в формуле (2.27) много больше единицы):

$$W_{THz} \cong \frac{\pi^3 S}{16a^2 c e^2 \sin^2 \alpha} \frac{D_0}{l_{sk}^2} (\hbar \nu_{ph})^2 \exp\left(\frac{4a\tau_p e^2 E_\tau^2}{9\pi^2 \hbar m \omega^2}\right). \quad (2.28)$$

В противоположном предельном случае, когда нагрев достаточно слабый, находим:

$$W_{THz} \cong \frac{S}{36\pi c \sin^2 \alpha} \frac{D_0}{l_{sk}^2} \frac{e^2 E_\tau^4}{m^2 \omega^4} (\tau_p \nu_{ph})^2. \quad (2.29)$$

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

$$W^* = \frac{9\pi^2 \hbar}{8a\tau_p}, \quad (2.30)$$

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 позволяет найти частоту  $\nu_{ph}$ .

Развитый подход позволяет успешно интерпретировать известные данные по конверсии мощных оптических импульсов в терагерцовое излучение на поверхности металлов [19, 36] и найти значения параметра  $a$  по экспериментальным графикам. Так, например, в работе [19] приведены экспериментальные кривые для золота и серебра, свидетельствующие о неквадратичном характере конверсии в диапазоне интенсивностей до 6 мДж/см<sup>2</sup>. 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 экспериментальными данными по рассеянию горячих электронов в золоте из работы [70], где установлено, что частота столкновений электронов примерно на порядок превосходит ожидаемое значение. С другой стороны, например, в работе [13]

по данным о нелинейном поглощении было получено, что значение  $a$  должно быть порядка 1. На данный момент вопрос остаётся до конца не исследованным.

Опираясь на экспериментальные данные из работы [36], можно определить пороговое значение интенсивности падающего оптического излучения для меди – около 20 мДж/см<sup>2</sup>. Отсюда получаем, что в аппроксимационной формуле для частоты электронных столкновений параметр  $a$  для меди примерно равен 5.

Выбор аппроксимации (2.26) не принципиален для предлагаемого метода. Можно сделать обобщение на случай неизвестной температурной зависимости эффективной частоты столкновений электронов, например, следующего вида:

$$\nu = \nu_0 + \beta T^n \quad (n < 2). \quad (2.31)$$

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

$$W_{THz} \propto W_{opt}^{\frac{4}{2-n}}. \quad (2.32)$$

Здесь предполагалось, что электронный газ в металле вырожден и коэффициент температуропроводности  $D$  равен  $v_F^2/3\nu$ . Таким образом, экспериментальное определение зависимости  $W_{THz}(W_{opt})$  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 неизвестна.

## 2.4 Заключение по Главе 2

Обобщая полученные результаты, можно утверждать, что учёт теплового воздействия лазерного импульса на металл позволяет дать количественное объяснение большинству наблюдаемых особенностей процесса генерации ТГц излучения. Приведём три наиболее важные характеристики, которые не содержатся в моделях с мгновенным квадратичным откликом, но воспроизводятся в тепловой модели генерации:

- 1) запаздывающий характер ТГц сигнала;
- 2) нелокальность отклика, проявляющаяся в экспериментах с тонкой фольгой;
- 3) величина энергии ТГц импульса (до 200 пДж в работе [7]).

В рамках тепловой модели также могут быть объяснены поляризация и диаграмма направленности терагерцового излучения и резко немонотонная зависимость энергии ТГц излучения от угла падения  $p$ -поляризованного лазерного импульса.

Обобщение тепловой модели генерации, выполненное в разделе 2.3, показало, что экспериментальная зависимость энергии терагерцового сигнала  $W_{THz}$  от энергии лазерного импульса  $W_{opt}$  может быть интерпретирована как следствие температурной зависимости частоты столкновений электронов. На основе этого результата был предложен новый метод измерения характеристик рассеяния и теплопроводности электронов в металлах, опирающийся на измерение характеристик терагерцового отклика. Было показано, что в общем случае неизвестную зависимость эффективной частоты столкновений от температуры  $\nu(T^n)$  также можно восстановить посредством экспериментального определения зависимости  $W_{THz}(W_{opt})$ .

По имеющимся экспериментальным данным были выполнены оценки параметров электрон-электронного рассеяния в золоте и в меди; полученные значения согласуются с ожидаемыми по порядку величины и подтверждаются независимыми измерениями в случае золота. Надо отметить, что в статьях разных авторов используемые константы могут значительно отличаться, и, следовательно, характеристики электрон-электронного рассеяния в металлах требуют дальнейшего уточнения. В этой связи экспериментальные методы, основанные на наблюдении низкочастотного отклика металлов на фемтосекундные лазерные импульсы, могут оказаться весьма актуальными.



### Глава 3. Гофрированные поверхности и наночастицы

Во введении был дан краткий обзор экспериментальных работ по генерации ТГц излучения с гофрированных поверхностей металлов; во всех подобных экспериментах наблюдается достаточно явный, хотя и широкий резонанс при выполнении условия синхронизма между замедленной волной над металлом и поверхностным плазмоном. В основной части данной главы ТГц отклик гофрированной поверхности металла рассмотрен с точки зрения теплового механизма генерации, обобщённого на случай возможного возбуждения поверхностных плазмонов  $p$ -поляризованной волной. Аналитическое рассмотрение основано на теории возмущений: предполагается, что амплитуда гофрировки мала по сравнению с оптической длиной волны и, следовательно, амплитуды возникающих дифракционных волн малы относительно амплитуды падающей волны.

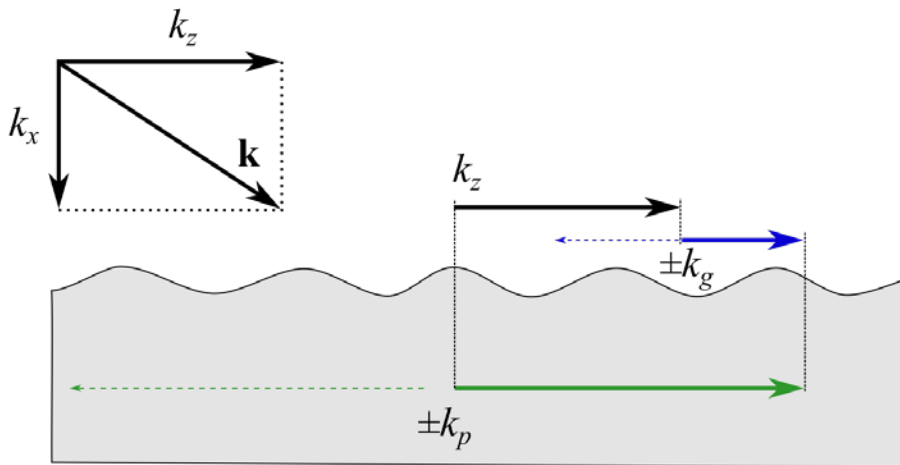


Рисунок 3.1. Условие пространственного синхронизма поверхностного плазмона и одной и дополнительных гармоник падающего излучения:  $k_p = k_z + k_g$ .

В последнем разделе Главы 3 уделено внимание другому возможному механизму генерации ТГц излучения, связанному с неоднородным нагревом металлических частиц и последующим неравномерным распределением тепловой энергии электронов. Отметим, что данный механизм генерации может реализовываться также и на различных гофрировках независимо от наличия плазмонных резонансов, в том числе – в случае естественной шероховатости поверхности металла.

### 3.1 Возбуждение поверхностного плазмона монохроматической электромагнитной волной

Рассмотрим задачу о возбуждении поверхностного плазмона в металле  $p$ -поляризованной плоской монохроматической электромагнитной волной. В случае  $s$ -поляризации, как известно, возбуждения поверхностных плазмонов не происходит (что подтверждается отсутствием резонансного поведения ТГц отклика в эксперименте). Для сокращения выкладок выберем двумерную геометрию задачи, когда все волновые вектора принадлежат плоскости  $(x, z)$ . Заранее заметим, что переход от монохроматического поля к импульсному будет удобнее выполнить с помощью спектрального подхода уже после нахождения амплитуды плазмона на заданной частоте, поскольку в рамках используемых приближений задача линейна.

#### 3.1.1 Граничные условия

Пусть гофрировка металла имеет гармонический профиль, так что координата границы поверхности по оси  $x$  описывается следующей функцией:

$$h(z) = h_0 \sin k_g z, \quad (3.1)$$

где  $h_0$  и  $k_g$  – амплитуда и волновое число гофрировки соответственно. Тогда угол наклона границы относительно направления оси  $z$  задаётся функцией  $\alpha(z)$ :

$$\operatorname{tg} \alpha(z) = \frac{dh}{dz} = k_g h_0 \cos k_g z. \quad (3.2)$$

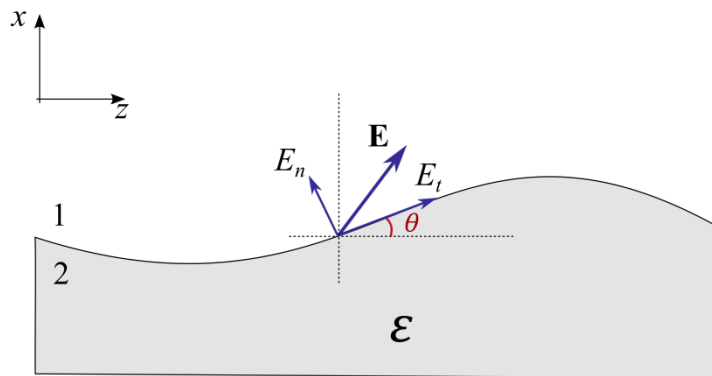


Рисунок 3.2. К выводу граничных условий на гофрированной поверхности

Поскольку в дальнейшем мы будем рассматривать случай мелкой гофрировки ( $k_0 h_0 \ll 1$ ) вблизи резонанса с плазмоном на оптической частоте (когда  $k_0$  одного порядка с  $k_g$ ), можно считать угол наклона  $\theta(z)$  малым  $\theta$ . Запишем разложение тангенциального и

нормального электрического поля по направлениям осей координат для случая малого угла  $\alpha$ :

$$E_\tau \cong E_z + E_x \cdot \theta(z), \quad (3.3)$$

$$E_n \cong E_x - E_z \cdot \theta(z). \quad (3.4)$$

Обозначим вакуум и металл индексами «1» и «2» и запишем граничные условия непрерывности тангенциального электрического поля  $E_\tau$ , тангенциального магнитного поля  $H_y$ , а также нормальной компоненты вектора электрической индукции  $D_n = \varepsilon E_n$ :

$$E_{\tau 1}|_{x=h_0 \sin k_g z} = E_{\tau 2}|_{x=h_0 \sin k_g z}, \quad (3.5)$$

$$H_{y1}|_{x=h_0 \sin k_g z} = H_{y2}|_{x=h_0 \sin k_g z}, \quad (3.6)$$

$$E_{n1}|_{x=h_0 \sin k_g z} = \varepsilon E_{n2}|_{x=h_0 \sin k_g z}. \quad (3.7)$$

Воспользуемся мелкостью гофрировки относительно оптической длины волны и разложим все поля в граничных условиях (3.5)-(3.7) в ряд Тейлора по текущей координате поверхности  $x$  до первого порядка малости:

$$E|_{x=h_0 \sin k_g z} \cong E|_{x=0} + \left. \frac{\partial E}{\partial x} \right|_{x=0} h_0 \sin k_g z. \quad (3.8)$$

Учитывая вид граничных условий (3.5)-(3.7) и приближённое представление полей (3.3), (3.4) и (3.8), можно предположить, что появление мелкой модуляции границы металл-вакуум вида (3.1) добавляет к известному решению в виде падающей, отражённой и прошедшей волн ещё четыре электромагнитных волны (по две в каждом полупространстве) с волновыми векторами по направлению  $z$ , равными  $k_z \pm k_g$ .

### 3.1.2 Амплитуды отражённых волн

Итак, рассмотрим следующие семь электромагнитных волн (см. рисунок) и покажем, что их сумма может удовлетворять всем граничным условиям в первом порядке малости по параметру  $k_g \cdot h_0$ :

- падающая волна:

$$\mathbf{E}_i(x, z, t) = \mathbf{E}_i \exp(i\omega t - ik_z z + ik_x x)$$

- зеркально отражённая волна:

$$\mathbf{E}_r(x, z, t) = \mathbf{E}_r \exp(i\omega t - ik_z z - ik_x x)$$

- основная «прошедшая» (нераспространяющаяся) волна внутри металла:

$$\mathbf{E}_t(x, z, t) = \mathbf{E}_t \exp(i\omega t - ik_z z + \eta x)$$

- первая дифракционная волна в верхнем полупространстве:

$$\mathbf{E}_{r1}(x, z, t) = \mathbf{E}_{r1} \exp[i\omega t - i(k_z - k_g)z - ik_{r1}x]$$

- вторая дифракционная волна в верхнем полупространстве:

$$\mathbf{E}_{r2}(x, z, t) = \mathbf{E}_{r2} \exp[i\omega t - i(k_z + k_g)z - \eta_{r2}x]$$

- первая дифракционная волна в нижнем полупространстве:

$$\mathbf{E}_{t1}(x, z, t) = \mathbf{E}_{t1} \exp[i\omega t - i(k_z - k_g)z + \eta_{t1}x]$$

- вторая дифракционная волна в нижнем полупространстве:

$$\mathbf{E}_{t2}(x, z, t) = \mathbf{E}_{t2} \exp[i\omega t - i(k_z + k_g)z + \eta_{t2}x]$$

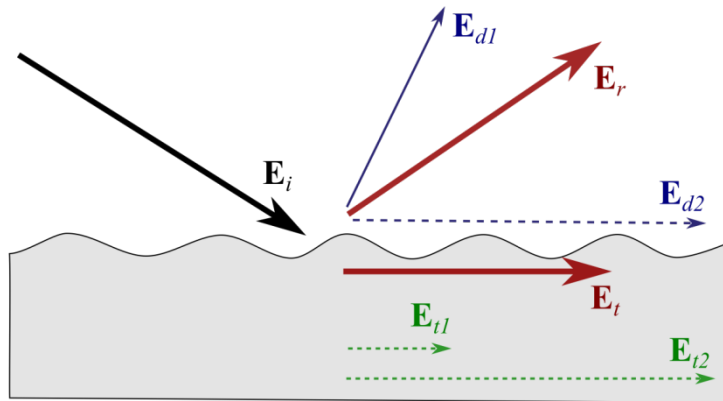


Рисунок 3.3. Полный набор электромагнитных волн в задаче о возбуждении поверхностного плазмона падающим оптическим излучением. Жирными векторами показаны волновые вектора полей нулевого порядка малости, тонкими – первого.

В записи такого вида мы заранее предполагаем, что синхронизм с собственной модой полуограниченного металла – поверхностным плазмоном, бегущим вправо – будет достигаться у второй дифракционной волны, именно поэтому она должна быть нераспространяющейся, т.е. иметь волновое число по оси  $z$  больше  $\omega/c$  и экспоненциально спадать в направлении  $x$ . Это предположение сделано исключительно для упрощения дальнейшего изложения; при больших значениях  $k_g$  нераспространяющейся окажется также и первая дифракционная волна, которая может аналогичным образом попасть в резонанс с поверхностным плазмоном, бегущим влево. Здесь и далее мы предполагаем, что действительная часть диэлектрической

проницаемости  $\varepsilon$  велика по модулю и отрицательна, поэтому все волны экспоненциально спадают вглубь металла; также в дальнейшем множитель  $e^{i\omega t}$  будет опускаться, поскольку все рассматриваемые поля имеют одинаковую частоту.

Итак, перейдём к записи приближённых граничных условия на плоскости  $x = 0$ , подставив в граничные условия (3.5)-(3.7) разложения (3.3) и (3.8) и пренебрегая слагаемыми второго порядка малости по  $k_g h_0$ :

$$\begin{cases} E_{z1} + \frac{\partial E_{z1}}{\partial x} h_0 \sin k_g z + E_{x1} \cdot k_g h_0 \cos k_g z = E_{z2} + \frac{\partial E_{z2}}{\partial x} h_0 \sin k_g z + E_{x2} \cdot k_g h_0 \cos k_g z \\ H_{y1} = H_{y2} \\ E_{x1} - E_{z1} \cdot k_g h_0 \cos k_g z + \frac{\partial E_{x1}}{\partial x} h_0 \sin k_g z = \varepsilon \left[ E_{x2} - E_{z2} \cdot k_g h_0 \cos k_g z + \frac{\partial E_{x2}}{\partial x} h_0 \sin k_g z \right] \end{cases} \quad (3.9)$$

После переноса слагаемых можно увидеть, какие именно поправки вносит гофрировка в невозмущённые граничные условия  $E_{z1} = E_{z2}$  и  $E_{x1} = \varepsilon E_{x2}$ :

$$\begin{cases} E_{z1} - E_{z2} = \left( \frac{\partial E_{z2}}{\partial x} - \frac{\partial E_{z1}}{\partial x} \right) h_0 \sin k_g z + (E_{x2} - E_{x1}) \cdot k_g h_0 \cos k_g z \\ E_{x1} - \varepsilon E_{x2} = (E_{z1} - \varepsilon E_{z2}) \cdot k_g h_0 \cos k_g z + \left( \varepsilon \frac{\partial E_{x2}}{\partial x} - \frac{\partial E_{x1}}{\partial x} \right) h_0 \sin k_g z \end{cases} \quad (3.10)$$

В результате подстановки выражений для полей рассматриваемых волн граничные условия (3.10) принимают следующий вид:

$$\begin{aligned} (E_{i,z} + E_{r,z} - E_{t,z})e^{-ik_z z} + (E_{r1,z} - E_{t1,z})e^{-i(k_z - k_g)z} + (E_{r2,z} - E_{t2,z})e^{-i(k_z + k_g)z} = \\ = [\eta E_{t,z} - ik_x(E_{i,z} - E_{r,z})]e^{-ik_z z} \cdot \frac{e^{ik_g z} - e^{-ik_g z}}{2i} h_0 + [E_{t,x} - (E_{i,x} + E_{r,x})]e^{-ik_z z} \\ \cdot k_g h_0 \frac{e^{ik_g z} + e^{-ik_g z}}{2}, \end{aligned} \quad (3.11)$$

$$\begin{aligned} (E_{i,x} + E_{r,x} - \varepsilon E_{t,x})e^{-ik_z z} + (E_{r1,x} - \varepsilon E_{t1,x})e^{-i(k_z - k_g)z} + (E_{r2,x} - \varepsilon E_{t2,x})e^{-i(k_z + k_g)z} = \\ = (E_{i,z} + E_{r,z} - \varepsilon E_{t,z}) \cdot k_g h_0 e^{-ik_z z} \cdot \frac{e^{ik_g z} + e^{-ik_g z}}{2} \\ + [\varepsilon \eta E_{t,x} - ik_x(E_{i,x} - E_{r,x})]h_0 e^{-ik_z z} \cdot \frac{e^{ik_g z} - e^{-ik_g z}}{2i}. \end{aligned} \quad (3.12)$$

Можно заметить, что каждое из соотношений (3.11) и (3.12) распадается на три независимых граничных условия для волн с волновыми векторами  $k_z$ ,  $k_z + k_g$  и  $k_z - k_g$ :

$$E_{i,z} + E_{r,z} - E_{t,z} = 0, \quad (3.11.1)$$

$$E_{r2,z} - E_{t2,z} = \frac{i}{2} [\eta E_{t,z} - ik_x (E_{i,z} - E_{r,z})] h_0 + \frac{1}{2} [E_{t,x} - (E_{i,x} + E_{r,x})] k_g h_0, \quad (3.11.2)$$

$$E_{r1,z} - E_{t1,z} = -\frac{i}{2} [\eta E_{t,z} - ik_x (E_{i,z} - E_{r,z})] h_0 + \frac{1}{2} [E_{t,x} - (E_{i,x} + E_{r,x})] k_g h_0, \quad (3.11.3)$$

$$E_{i,x} + E_{r,x} - \varepsilon E_{t,x} = 0, \quad (3.12.1)$$

$$E_{r2,x} - \varepsilon E_{t2,x} = \frac{1}{2} (E_{i,z} + E_{r,z} - \varepsilon E_{t,z}) \cdot k_g h_0 + \frac{i}{2} [\varepsilon \eta E_{t,x} - ik_x (E_{i,x} - E_{r,x})] h_0, \quad (3.12.2)$$

$$E_{r1,x} - \varepsilon E_{t1,x} = \frac{1}{2} (E_{i,z} + E_{r,z} - \varepsilon E_{t,z}) \cdot k_g h_0 - \frac{i}{2} [\varepsilon \eta E_{t,x} - ik_x (E_{i,x} - E_{r,x})] h_0. \quad (3.12.3)$$

В дополнение к данной системе уравнений необходимо записать условие нулевой дивергенции электрического поля в каждой точке пространства (за исключением самой границы), связывающее проекции электрического поля каждой из волн на оси  $x$  и  $z$ :

$$ik_x E_{i,x} - ik_z E_{i,z} = 0, \quad (3.13.r)$$

$$-ik_x E_{r,x} - ik_z E_{r,z} = 0, \quad (3.13.r)$$

$$\eta E_{t,x} - ik_z E_{t,z} = 0, \quad (3.13.t)$$

$$-ik_{r1} E_{r1,x} - i(k_z - k_g) E_{r1,z} = 0, \quad (3.13.r1)$$

$$-\eta_{r2} E_{r2,x} - i(k_z + k_g) E_{r2,z} = 0, \quad (3.13.r2)$$

$$\eta_{t1} E_{t1,x} - i(k_z - k_g) E_{t1,z} = 0, \quad (3.13.t1)$$

$$\eta_{t2} E_{t2,x} - i(k_z + k_g) E_{t2,z} = 0, \quad (3.13.t2)$$

Итоговая система уравнений (3.11.1)-(3.11.3), (3.12.1)-(3.12.3), (3.13.r)-(3.13.t2) является полной системой для комплексных амплитуд всех волн (кроме падающей). Входящие в данную систему проекции волновых векторов на направление  $x$  могут быть найдены из уравнения Гельмгольца  $\Delta E + \varepsilon k_0^2 E = 0$ :

$$k_x^2 = k_0^2 - k_z^2, \quad (3.14.r)$$

$$\eta^2 = -\varepsilon k_0^2 + k_z^2, \quad (3.14.t)$$

$$\eta_{t1}^2 = -\varepsilon k_0^2 + (k_z - k_g)^2, \quad (3.14.t1)$$

$$\eta_{t2}^2 = -\varepsilon k_0^2 + (k_z + k_g)^2, \quad (3.14.t2)$$

$$k_{r1}^2 = k_0^2 - (k_z - k_g)^2, \quad (3.14.r1)$$

$$\eta_{r2}^2 = -k_0^2 + (k_z + k_g)^2. \quad (3.14.r2)$$

Соотношения (3.11.1) и (3.12.1) при учёте связей (3.13) позволяют найти амплитуды  $\mathbf{E}_r$  и  $\mathbf{E}_t$  и убедиться в том, что в линейном приближении по параметру  $k_0 h_0$  они не изменяются при появлении гофрировки:

$$E_{t,z} = \frac{2\eta}{\eta + i\varepsilon k_x} E_{i,z}, \quad (3.15)$$

$$E_{r,z} = \frac{\eta - i\varepsilon k_x}{\eta + i\varepsilon k_x} E_{i,z}. \quad (3.16)$$

Далее, из уравнений (3.11.2), (3.11.3), (3.12.2) и (3.12.3) можно выразить амплитуды дифракционных волн  $\mathbf{E}_{r1}$ ,  $\mathbf{E}_{r2}$ ,  $\mathbf{E}_{t1}$  и  $\mathbf{E}_{t2}$ . В дальнейшем изложении будет важна амплитуда второй дифракционной волны, поскольку именно она зависит резонансным образом от параметров гофрировки (и, соответственно, от угла падения электромагнитной волны). Поле второй дифракционной волны внутри металла имеет следующую амплитуду:

$$E_{t2,z} = \eta_{r2} h_0 E_{i,z} \left\{ \frac{(k_z + k_g)(\eta^2 + \varepsilon k_x^2) + (ik_z + \eta)(1 - \varepsilon)\eta_{r2} k_g - k_z \eta_{r2} \varepsilon (\eta - ik_x)}{(i\eta - \varepsilon k_x)(k_z + k_g) \left( \underline{\underline{\eta_{t2} + \varepsilon \eta_{r2}}} \right)} \right\} \quad (3.17)$$

В выражении (3.17) резонансный множитель выделен двойным подчёркиванием в знаменателе. Преобразуем условие резонанса и убедимся в том, что оно совпадает с известным условием синхронизма между одной из электромагнитных волн над поверхностью металла и поверхностным плазмоном:

$$\eta_{t2} + \varepsilon \eta_{r2} = 0, \quad (3.18)$$

то есть, с учётом (3.14.t2) и (3.14.r2):

$$\begin{aligned} \sqrt{-\varepsilon k_0^2 + (k_z + k_g)^2} + \varepsilon \sqrt{-k_0^2 + (k_z + k_g)^2} &= 0, \\ k_z + k_g &= k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon}{\varepsilon + 1}} \equiv k_p, \end{aligned} \quad (3.19)$$

что соответствует обсуждаемому синхронизму ( $k_p$  – волновое число поверхностного плазмона, существующего вблизи плоской границы металла). Заметим, что для существования локализованной моды необходимо, чтобы на данной частоте диэлектрическая проницаемость  $\varepsilon$  имела действительную часть  $\varepsilon'$ , меньшую  $-1$ .

Выполнение точного синхронизма (3.19) приводит к бесконечной амплитуде поверхностного плазмона, что, очевидно, противоречит исходному предположению о малости амплитуды дифракционных волн. В реальных условиях возникают два основных ограничения: поглощение излучения в среде, то есть ненулевая мнимая часть диэлектрической проницаемости  $\varepsilon''$ , и конечная длительность возбуждающего лазерного импульса.

Первое ограничение проявляется в том, что может быть выполнена только действительная часть резонансного условия (3.18):

$$\begin{cases} \operatorname{Re}(\eta_{t2} + \varepsilon\eta_{r2}) = 0 \\ \operatorname{Im}(\eta_{t2} + \varepsilon\eta_{r2}) \cong k_0 \frac{\varepsilon''}{2\sqrt{-\varepsilon'}} \end{cases} \quad (3.20)$$

$$(\text{при условии } \varepsilon'' \ll \varepsilon', \quad |\varepsilon'| \gg 1) \quad (3.21)$$

Упростим выражение (3.17) с учётом неравенств (3.21), которые в оптическом диапазоне частот достаточно хорошо описывают металлы с высокой проводимостью – золото, серебро, медь, алюминий и др. Введём угол падения лазерного импульса на металл  $\alpha$  (как и в предыдущих главах, отсчитывается от поверхности). Как следует из равенств (3.14) и (3.19), вблизи резонанса можно воспользоваться приближёнными выражениями для волновых чисел:

$$k_z + k_g \cong k_0 \left(1 - \frac{1}{2\varepsilon}\right), \quad (3.22)$$

$$\eta \cong \eta_{t1} \cong \eta_{t2} \cong k_0 \sqrt{-\varepsilon}, \quad (3.23)$$

$$\eta_{r2} \cong \frac{k_0}{\sqrt{-\varepsilon}}. \quad (3.24)$$

В таком приближении будет справедлива следующая оценка для амплитуды продольного электрического поля плазмона (3.17) в условиях резонанса при конечном поглощении:

$$E_{t2,z} \cong -2 \frac{1 + \cos^2 \alpha}{\sin \alpha} \frac{k_0 h_0}{\varepsilon''} E_{i,z}. \quad (3.25)$$

Откуда видно, что при угле падения  $45^\circ$  и типичном для золота значении  $|\varepsilon''| \approx 1$  поле плазмона будет сопоставимо с полем падающего излучения уже при амплитуде гофрировки, составляющей 3% от длины волны.

Рассмотрим второй фактор, ограничивающий амплитуду плазмона (3.17), – конечную ширину спектра возбуждающего лазерного импульса. Пусть в оптическом диапазоне диэлектрическую проницаемость металла можно описать в рамках модели свободных электронов:

$$\varepsilon = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}. \quad (3.26)$$

Найдём вариацию знаменателя (3.18) при малом отклонении частоты от резонансного значения:



$$\delta(\eta_{t2} + \varepsilon\eta_{r2}) \cong |\varepsilon'|^{3/2} \left( \sqrt{\frac{\varepsilon}{\varepsilon + 1}} \cos \alpha - 1 \right) \frac{\delta\omega}{c}, \quad (3.27)$$

или, с учётом (3.26):

$$\delta(\eta_{t2} + \varepsilon\eta_{r2}) \cong \frac{\omega_p^3}{\omega^3} \left( \sqrt{\frac{\omega_p^2}{\omega_p^2 - \omega^2}} \cos \alpha - 1 \right) \frac{\delta\omega}{c}. \quad (3.28)$$

Для амплитуды второй волны дифракции (3.17) при отстройке от частоты поверхностного плазмона на величину  $\delta\omega$  получаем следующую оценку:

$$E_{t2,z}(\omega + \delta\omega) \cong -\frac{1 + \cos^2 \alpha}{\sin \alpha} k_0 h_0 \frac{\omega}{\delta\omega} \frac{1}{\frac{\omega_p^4}{\omega^4} \left( \sqrt{\frac{\omega_p^2}{\omega_p^2 - \omega^2}} \cos \alpha - 1 \right)} E_{i,z}(\omega + \delta\omega). \quad (3.29)$$

При характерной длительности лазерного импульса 50 фс и длине волны излучения 800 нм отстройка частоты составит порядка 1%. Если плазменная частота превосходит частоту излучения в 5 раз (примерно соответствует параметрам золота), амплитуда гофрировки составляет 10% от длины волны, то для угла падения  $45^\circ$  оценка (3.29) даёт поле плазмона лишь на уровне 0,6 от поля падающей волны. Сопоставление оценок (3.29) и (3.25) показывает, что в рассматриваемых условиях при возбуждении поверхностных плазмонов фемтосекундными лазерными импульсами их амплитуда будет ограничиваться в основном конечным спектром лазерного импульса и в меньшей степени – потерями в металле. Заметим, что при выборе резонансного угла падения  $\alpha = \omega/\omega_p$  отстройка от резонанса (3.28) резко уменьшается, что должно приводить к возрастанию амплитуды плазмона. Здесь мы ограничимся выбором достаточно больших углов падения  $\alpha \gg \omega/\omega_p$ , поскольку большинство известных нам экспериментов выполнены при  $\alpha \approx 45^\circ$ , а полный анализ условий эффективного возбуждения поверхностных плазмонов требует отдельного детального рассмотрения.

### 3.2 Затухание плазмона: поглощение и дифракционные потери

Возбуждение поверхностного плазмона на границе металла должно приводить к увеличению поглощения падающей волны и к усилению нагрева электронной подсистемы металла. Следовательно, поверхностные плазмоны должны вносить определённый вклад в формирование ТГц отклика металла в рамках теплового механизма генерации.

Вначале рассмотрим затухание свободно распространяющегося плазмона, которое можно оценить из дисперсионного соотношения (3.19), выделив явно действительную и мнимую части диэлектрической проницаемости металла (далее мы по-прежнему используем приближение (3.21)):

$$k_p = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon}{\varepsilon + 1}} \cong k_0 \left( 1 - \frac{1}{2\varepsilon'} + i \frac{\varepsilon''}{2\varepsilon'^2} \right), \quad (3.30)$$

$$\varepsilon = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega - i\nu)} \cong -\frac{\omega_p^2}{\omega^2} - i \frac{\omega_p^2 \nu}{\omega^3}. \quad (3.31)$$

Из выражений (3.30) и (3.31) также находим:

$$Im(k_p) \cong -\frac{\nu\omega}{2\omega_p^2} k_0. \quad (3.32)$$

При длине волны 800 нм, используя параметры золота  $\varepsilon'' = 1,6$ ,  $\varepsilon' = -22$ , получаем  $Im(k_p) \cong -1,8 \cdot 10^{-3} k_0$ , то есть длина свободного пробега плазмона составляет порядка 80 мкм, что соответствует времени затухания около 250 фс. Отметим, что для расчётов предпочтительнее использовать более общее выражение (3.30), поскольку формула (3.32) удовлетворительно оценивает длину свободного пробега плазмонов лишь в ИК диапазоне, а в оптическом диапазоне даёт завышенные оценки для большинства металлов, т.к. не учитывает резонансное поглощение на межзонных переходах.

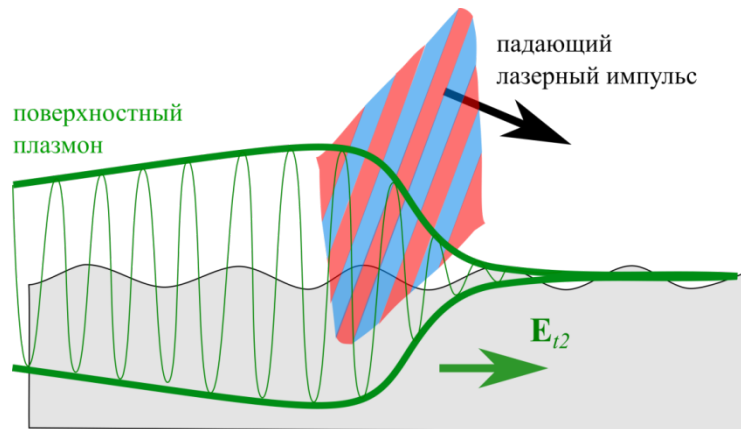


Рисунок 3.4. Схематичное изображение возбуждения поверхностного плазмона лазерным импульсом ограниченной длительности.

Проанализируем более подробно временную динамику возбуждения плазмона, используя приближённое выражение для амплитуды (3.29) в случае достаточно больших углов  $\alpha$ :

$$E_{t2,z}(\omega) \cong \frac{1 + \cos^2 \alpha}{\sin \alpha (1 - \cos \alpha)} k_0 h_0 \frac{\omega^4}{\omega_p^4} \frac{\omega}{\delta \omega} E_{i,z}(\omega). \quad (3.33)$$

Пусть падающая волна  $E_i(t)$  имеет гауссов временной профиль и гауссов спектр:

$$\mathbf{E}_i(\omega) \propto e^{-4(\omega - \omega_0)^2 \tau^2}, \quad (3.34)$$

$$\mathbf{E}_i(t) = \mathbf{E}_i e^{-t^2/\tau^2} e^{i\omega_0 t}. \quad (3.35)$$

Тогда, если падающую волну считать квазимонохроматической ( $\omega_0 \tau \gg 1$ ), временная форма поля плазмона (3.33) будет иметь следующий вид:

$$E_{t2,z}(t) \cong i \frac{1 + \cos^2 \alpha}{\sin \alpha (1 - \cos \alpha)} k_0 h_0 \frac{\omega_0^4}{\omega_p^4} E_{i,z} e^{i\omega_0 t} \omega_0 \tau \int_{-\infty}^{t/\tau} e^{-x^2} dx. \quad (3.36)$$

Как видно, в таком приближении электрическое поле плазмона колеблется в квадратуре с падающей волной. Учёт конечного поглощения плазмона в металле  $Im(k_p) \cong -\frac{\varepsilon''}{2\varepsilon'^2} k_0$  во временной задаче приведёт к появлению экспоненциального фактора  $\exp\left[-\frac{\varepsilon''}{2\varepsilon'^2} \nu t\right]$ . Схематичное изображение динамики возбуждения поверхностного плазмона приведено на рисунке 3.4.

Выражение (3.36) позволяет вычислить скорость роста амплитуды плазмона, который возбуждается квазимонохроматической электромагнитной волной с переменной амплитудой  $\mathbf{E}_i(t)$ :

$$\frac{\partial |E_{t2,z}(t)|}{\partial t} \cong \frac{1 + \cos^2 \alpha}{\sin \alpha (1 - \cos \alpha)} k_0 h_0 \frac{\omega_0^4}{\omega_p^4} \omega_0 E_{i,z}(t). \quad (3.37)$$

Отсюда находим характерное время, за которое амплитуда плазмона становится одного порядка с амплитудой падающего поля  $\mathbf{E}_i$ :

$$\tau_{i-p} \cong \frac{\sin \alpha (1 - \cos \alpha)}{1 + \cos^2 \alpha} \frac{1}{k_0 h_0} \frac{\omega_p^4}{\omega_0^4} \frac{1}{\omega_0}, \quad (3.38)$$

что при длине волны падающего излучения 800 нм, амплитуде гофрировки 40 нм и угле падения  $45^\circ$  для параметров золота даёт порядка 100 фс.

При любой конечной амплитуде гофрировки плазмон испытывает дифракционные потери, трансформируясь в отражённую волну. Чтобы не перегружать выкладки, мы пренебрегли этим эффектом при переходе от системы (3.10) к системе (3.11)-(3.12), т.к. он имеет второй порядок малости по параметру  $k_0 h_0$ . Однако в дальнейшем оценка

дифракционных потерь будет важна, поскольку они напрямую влияют на то, какая часть энергии плазмона перейдёт в тепловую энергию электронов.

Рассмотрим задачу о дифракционных потерях плазмона, распространяющегося вдоль гофрированной поверхности металла, используя полученные ранее граничные условия (3.10). В первом порядке по  $k_0 h_0$  необходимо учесть следующие шесть волн:

- Поверхностный плазмон внутри металла:

$$\mathbf{E}_{p2}(x, z, t) = \mathbf{E}_{p2} \exp[i\omega t - ik_p z + \eta_{p2} x]$$

- Поверхностный плазмон вне металла:

$$\mathbf{E}_{p1}(x, z, t) = \mathbf{E}_{p1} \exp[i\omega t - ik_p z + \eta_{p1} x]$$

- Волна с  $k_z = k_p + k_g$  внутри металла (первый порядок малости):

$$\mathbf{E}_{+2}(x, z, t) = \mathbf{E}_{+2} \exp(i\omega t - i(k_p + k_g)z + \eta_{+2} x)$$

- Волна с  $k_z = k_p + k_g$  вне металла (первый порядок малости):

$$\mathbf{E}_{+1}(x, z, t) = \mathbf{E}_{+1} \exp(i\omega t - i(k_p + k_g)z + \eta_{+1} x)$$

- Волна с  $k_z = k_p - k_g$  внутри металла (первый порядок малости):

$$\mathbf{E}_{-2}(x, z, t) = \mathbf{E}_{-2} \exp(i\omega t - i(k_p - k_g)z + \eta_{-2} x)$$

- Волна с  $k_z = k_p - k_g$  вне металла (совпадает с отражённой волной в задаче о возбуждении плазмона, первый порядок малости):

$$\mathbf{E}_{-1}(x, z, t) = \mathbf{E}_{-1} \exp(i\omega t - i(k_p - k_g)z - ik_x x)$$

После подстановки этих полей в граничные условия (3.10) получаем:

$$\begin{aligned} & (E_{+1,z} - E_{+2,z})e^{-i(k_p+k_g)z} + (E_{-1,z} - E_{-2,z})e^{-i(k_p-k_g)z} = \\ & = \left( \frac{\partial E_{p2,z}}{\partial x} - \frac{\partial E_{p1,z}}{\partial x} \right) e^{-ik_p z} h_0 \frac{e^{ik_g z} - e^{-ik_g z}}{2i} \\ & + (E_{p2,x} - E_{p1,x}) e^{-ik_p z} \cdot k_g h_0 \frac{e^{ik_g z} + e^{-ik_g z}}{2} \end{aligned} \quad (3.39)$$

$$\begin{aligned}
& (E_{+1,x} - \varepsilon E_{+2,x})e^{-i(k_p+k_g)z} + (E_{-1,x} - \varepsilon E_{-2,x})e^{-i(k_p-k_g)z} \\
&= (E_{p1,z} - \varepsilon E_{p2,z})e^{-ik_p z} \cdot k_g h_0 \frac{e^{ik_g z} + e^{-ik_g z}}{2} \\
&+ \left( \varepsilon \frac{\partial E_{p2,x}}{\partial x} - \frac{\partial E_{p1,x}}{\partial x} \right) e^{-ik_p z} h_0 \frac{e^{ik_g z} - e^{-ik_g z}}{2i} \quad (3.40)
\end{aligned}$$

Как и выше, уравнения (3.39) и (3.40) распадаются на независимые граничные условия для волн с различными проекциями волнового вектора на ось  $z$  (равенство коэффициентов при  $e^{-ik_p z}$  дублирует условие существования поверхностного плазмона и выполняется автоматически, далее оно опущено):

$$E_{+1,z} - E_{+2,z} = -\frac{1}{2i} \left( \frac{\partial E_{p2,z}}{\partial x} - \frac{\partial E_{p1,z}}{\partial x} \right) h_0 + \frac{1}{2} (E_{p2,x} - E_{p1,x}) \cdot k_g h_0 \quad (3.39.1)$$

$$E_{-1,z} - E_{-2,z} = \frac{1}{2i} \left( \frac{\partial E_{p2,z}}{\partial x} - \frac{\partial E_{p1,z}}{\partial x} \right) h_0 + \frac{1}{2} (E_{p2,x} - E_{p1,x}) \cdot k_g h_0 \quad (3.39.2)$$

$$E_{+1,x} - \varepsilon E_{+2,x} = \frac{1}{2} (E_{p1,z} - \varepsilon E_{p2,z}) \cdot k_g h_0 - \frac{1}{2i} \left( \varepsilon \frac{\partial E_{p2,x}}{\partial x} - \frac{\partial E_{p1,x}}{\partial x} \right) h_0 \quad (3.40.1)$$

$$E_{-1,x} - \varepsilon E_{-2,x} = \frac{1}{2} (E_{p1,z} - \varepsilon E_{p2,z}) \cdot k_g h_0 + \frac{1}{2i} \left( \varepsilon \frac{\partial E_{p2,x}}{\partial x} - \frac{\partial E_{p1,x}}{\partial x} \right) h_0 \quad (3.40.2)$$

Для поля волны  $E_{-1}$  (соответствующей отражённой волне в предыдущей постановке и единственной распространяющейся волны в данной задаче) получаем:

$$\begin{aligned}
& \left( \varepsilon \frac{ik_z}{\eta_{-2}} - \frac{k_z}{k_x} \right) E_{-1,z} \\
&= \frac{1}{2} (E_{p1,z} - \varepsilon E_{p2,z}) \cdot k_g h_0 + \frac{1}{2i} \left( \varepsilon \frac{\partial E_{p2,x}}{\partial x} - \frac{\partial E_{p1,x}}{\partial x} \right) h_0 \\
&- \varepsilon \frac{ik_z}{\eta_{-2}} \left( \frac{1}{2i} \left( \frac{\partial E_{p2,z}}{\partial x} - \frac{\partial E_{p1,z}}{\partial x} \right) h_0 + \frac{1}{2} (E_{p2,x} - E_{p1,x}) \cdot k_g h_0 \right) \quad (3.41)
\end{aligned}$$

Далее воспользуемся неравенством  $|\varepsilon| \gg 1$  для упрощения выкладок и выразим входящие в (3.41) поля через одну проекцию поля плазмона:

$$E_{-1,z} \cong -i \frac{1 + \cos \alpha}{2 \cos \alpha} \sqrt{-\varepsilon} (k_g + k_0) h_0 E_{p2,z}. \quad (3.42)$$

Подставив в (3.42) выражение для поля плазмона, возбуждаемого падающей волной (3.36), находим:

$$E_{-1,z} = \frac{(1 + \cos \alpha)(1 + \cos^2 \alpha)}{2 \cos \alpha \sin \alpha (1 - \cos \alpha)} (k_g + k_0) k_0 h_0^2 \frac{\omega_0^3}{\omega_p^3} E_{i,z} e^{i\omega_0 t} \omega_0 \tau \int_{-\infty}^{t/\tau} e^{-x^2} dx. \quad (3.43)$$

Важно, что при  $|\varepsilon| \gg 1$  плазмон трансформируется в отражённую волну  $E_{-1}$ , которая находится в противофазе с основной отражённой волной падающего излучения (3.16). Таким образом, если гофрированная поверхность металла облучается ограниченным по длительности оптическим импульсом, суммарная отражённая волна должна спадать по мере роста амплитуды плазмона. Оценим время, за которое волна рассеяния (3.43) станет равна основной отражённой волне (3.16) при воздействии падающего излучения постоянной амплитуды:

$$\tau_{i-p-r} \cong \frac{(1 - \cos \alpha) \sin 2\alpha}{(1 + \cos \alpha)(1 + \cos^2 \alpha)} \frac{1}{(k_g + k_0)k_0 h_0^2} \frac{\omega_p^3}{\omega_0^3} \frac{1}{\omega_0}. \quad (3.44)$$

При использованных выше параметрах (длина волны 800 нм, амплитуда гофрировки 40 нм, плазменная частота в 5 раз превосходит оптическую, угол падения  $45^\circ$ ) оценка (3.44) даёт порядка 40 фс, при амплитуде гофрировки 20 нм – 160 фс. Это означает, что в рассматриваемой области параметров отражение падающей волны может быть значительно ослаблено за счёт деструктивной интерференции с дифракционной волной, возбуждаемой плазмоном. Более точный анализ данных эффектов выходит за рамки текущего рассмотрения.

### 3.3 Вклад поверхностных плазмонов в ТГц отклик

Проанализируем вклад поверхностных плазмонов в нагрев электронной подсистемы металла для типичных условий эксперимента. Сначала вычислим поверхностную плотность энергии плазмона с амплитудой (3.36) после окончания действия лазерного импульса ( $t \gg \tau$ ), проинтегрировав плотность энергии поля по поперечной координате  $x$ :

$$w_{s.p.} \cong \int_0^{+\infty} \frac{|E_{r2}|^2}{8\pi} dx \cong \frac{(1 + \cos^2 \alpha)^2 (k_0 h_0)^2 \omega_0^5}{8(1 - \cos \alpha)^2 \omega_p^5} (\omega_0 \tau)^2 \frac{E_i^2}{2k_0}. \quad (3.45)$$

При получении (3.45) учтено, что основная часть энергии поверхностного плазмона распространяется над поверхностью металла и сосредоточена в поперечной компоненте электрического поля  $E_x$ . Если металл облучается лазерным пучком с конечной площадью  $S$ , то при подсчёте полной энергии, перешедшей в локализованную поверхностную волну, необходимо принимать во внимание разницу в скоростях распространения светового пятна и плазмона, которая составляет приблизительно  $c(1/\cos \alpha - 1)$ .

Вычислим долю энергии лазерного импульса, которая переходит в энергию поверхностного плазмона  $W_{s.p.}$ :

$$\frac{W_{s.p.}}{W_{opt}} \cong \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{(1 + \cos^2 \alpha)^2 \omega_0^5}{(1 - \cos \alpha) \omega_p^5} (k_0 h_0)^2 \omega_0 \tau . \quad (3.46)$$

Для параметров, выписанных после формулы (3.44), и длительности лазерного импульса 50 фс, формула (3.46) даёт величину порядка 4%, при угле  $\alpha = 30^\circ$  – уже около 9%, что превосходит коэффициент поглощения золота в случае гладкой поверхности.

Чтобы определить, какая часть энергии плазмона действительно поглотится металлом, а какая – переизлучится из-за дифракционных потерь, найдём время, за которое дифракционная волна (3.43) сможет «вынести» поверхностную энергию (3.45):

$$\tau_d = \frac{8\pi W_{s.p.}}{cE_{-1}^2 \sin \alpha} \cong \frac{2 \cos^2 \alpha}{(1 + \cos \alpha)^2 \sin \alpha} \frac{1}{(k_g + k_0)^2} \frac{\omega_p}{h_0^2} \frac{1}{\omega_0} . \quad (3.47)$$

При угле падения  $30^\circ$  и амплитуде гофрировки 20 нм получаем характерное время около 100 фс, что уже меньше времени затухания плазмона за счёт потерь в металле, приведённого выше. Однако, для адекватной оценки времени поглощения необходимо прибавить ко времени (3.47) длительность самого лазерного импульса, в течение действия которого дифракционная волна плазмона деструктивно интерферирует с отражённой волной.

Если глубина гофрировки мала, и дифракционными потерями поверхностного плазмона можно пренебречь, он полностью поглотится в металле, сообщив электронам дополнительную тепловую энергию. В соответствии с развитой во второй главе теорией, генерируемое в этом процессе ТГц поле будет пропорционально возникающему градиенту температуры. Формула (3.46) показывает, что поглощённая энергия плазмона, а значит и дополнительная тепловая энергия электронов, должна зависеть от глубины гофрировки квадратично. Следовательно, энергия ТГц сигнала должна расти пропорционально  $(c_0 + k_0^2 h_0^2)^2$ , пока дифракционные потери не начнут превосходить поглощение в металле ( $c_0$  – константа, определяемая поглощением металла, независимым от гофрировки).

Для полной проверки этого вывода известных нам экспериментальных данных в целом недостаточно; тем не менее, можно провести достаточно полезное сопоставление. В работе [47] исследовалась генерация ТГц излучения при отражении фемтосекундных лазерных импульсов (50 фс, 800 нм) от образцов золота с прямоугольной гофрировкой;

на рисунке 12 (b) в этой статье приводятся временные формы ТГц сигналов, полученных при значениях параметра  $h_0 = 15, 20$  и  $30$  нм. Соответствующие амплитуды сигналов относятся приблизительно как 1:4:9 (в то время как глубины гофрировки в 4 степени относятся как 1:3,2:16).

В работе [74] в аналогичном эксперименте (импульс 150 фс, 795 нм) использовались существенно большие амплитуды гофрировки ( $h_0$  от 35 до 90 нм), и были обнаружены спадающие участки зависимости энергии ТГц сигнала от  $h_0$ . По-видимому, при больших амплитудах гофрировки дифракционные потери плазмона начинают превосходить поглощение в среде, вследствие чего суммарное поглощение сначала перестаёт расти, а затем спадает. Эти соображения в целом подтверждаются нашей оценкой (3.47): так, уже при  $h_0 > 30$  нм дифракционные потери должны рассеивать плазмон быстрее, чем за 50 фс.

Одни из немногих измерений, которые позволяют провести количественное сопоставление развитой теории с экспериментом, были выполнены в работе [57]. В [57] было обнаружено, что при облучении образца золотой фольги площадью  $0,25 \text{ см}^2$  с амплитудой гофрировки 45 нм лазерным импульсом с плотностью потока энергии  $0,76 \text{ мДж/см}^2$  и длительностью 150 фс (центральная длина волны 785 нм) генерируется терагерцовый сигнал с энергией около 0,42 фемтоджоулей. Поскольку спектральная чувствительность измерительной аппаратуры была ограничена диапазоном 0,34–0,38 ТГц, полноценное сравнение с представленной моделью выполнить сложно. Для приведённых параметров возбуждение поверхностных плазмонов обеспечивает дополнительное поглощение на уровне 4% от мощности падающего лазерного излучения – порядка 3 мэВ тепловой энергии на один электрон в скин-слое; в соответствии с развитой в Главе 2 теорией такой нагрев электронов должен приводить к генерации ТГц сигнала с энергией порядка 0,25 фДж. Как видно, этот результат соответствует эксперименту по порядку величины, однако для детального сопоставления необходимо учитывать спектральные характеристики измерительных приборов и влияние прямоугольного профиля гофрировки на процесс поглощения лазерного импульса.

### 3.4 О генерации ТГц излучения массивами частиц

Возможность возбуждения поверхностных плазмонов – не единственный фактор, который может влиять на генерацию ТГц излучения при взаимодействии лазерных



импульсов со структурированными металлами. Тепловая модель терагерцового отклика, развитая в Главе 2, показывает, что фактически в любой конфигурации быстрый неоднородный нагрев электронной подсистемы металла и последующая релаксация тепла должна приводить к возникновению низкочастотной поляризации среды с характерным временем изменения от 0,1 до 1 пикосекунды. Наиболее наглядно это можно продемонстрировать на примере взаимодействия лазерного импульса с массивом несимметричных наночастиц (см. Рисунок 3.5).

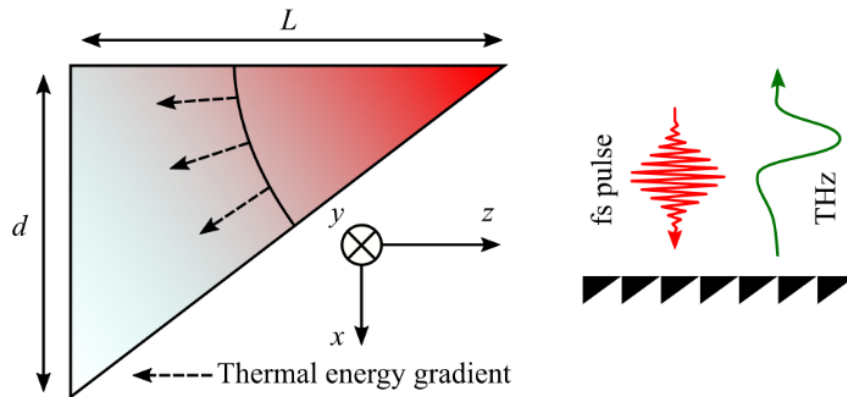


Рисунок 3.5. Генерация ТГц излучения массивом несимметричных металлических частиц. Слева: формирование градиента температуры внутри частицы. Справа: схематичное изображение процесса генерации.

Даже без учёта усиления электрического поля на острие частицы и при плоском падении оптического излучения на массив таких частиц перераспределение тепловой энергии после нагрева должно привести к возникновению градиента температуры. В простейшем случае, если продольный размер треугольной частицы  $L$  много больше её поперечного размера  $d$  (который в 2-3 раза превосходит глубину скин-слоя), диффузия тепла по направлению оси  $z$  будет идти много дольше, чем по направлению  $x$ . Поэтому в течение некоторого времени в левой половине частицы (см. Рисунок 3.5) будет происходить интенсивный теплообмен, а в правой половине электроны сохранят прежнюю температуру, поскольку для них диффузия вглубь металла невозможна. Затем произойдёт выравнивание температур – либо за счёт отдачи тепла в кристаллическую решётку, либо из-за диффузии внутри электронной подсистемы в направлении  $z$ . Элементарная оценка показывает, что при получении электронами в скин-слое тепловой энергии  $\delta\epsilon$  в процессе распространения тепла возникает следующий градиент тепловой энергии:

$$\nabla\varepsilon \approx \frac{\delta\varepsilon}{L}. \quad (3.48)$$

Следовательно, в соответствии с формулой (2.10), вблизи поверхности частицы возникает квазистатическое электрическое поле:

$$E_z \approx \frac{2\delta\varepsilon}{3eL}. \quad (3.49)$$

В процессе распространения тепла электрическое поле и распределение заряда будут изменяться, а значит, будет изменяться и поляризация всей частицы. Как любой переменный диполь, такая частица станет источником излучения, длительность которого будет определяться временем перераспределения тепла (порядка 0,1–1 пс). При рассмотрении частиц нано-масштаба величина поля (3.49) может достигать значительных величин для типичных условий эксперимента. Так, в работах [43, 45] использовалось лазерное излучение с плотностью потока энергии до 9 мДж/см<sup>2</sup>, что даёт нагрев электронов в скин-слое на величину порядка 0,1 эВ. Для  $L = 70$  нм это соответствует величине электрического поля около 10 кВ/см.

В указанных экспериментальных работах механизмы генерации ТГц излучения не обсуждались, однако подчёркивалась роль объёмных плазмонных резонансов в процессе конверсии. В рамках тепловой модели ТГц отклика объёмные плазмонные резонансы (как и выше – поверхностные) могут быть эффектом, усиливающим поглощение оптического излучения и, следовательно, увеличивающим нагрев электронной подсистемы. Таким образом, тепловой механизм генерации представляется достаточно перспективным, в том числе и для анализа экспериментов с металлическими частицами, поскольку он даёт интерпретацию как самому факту появления ТГц отклика, так и существенному запаздыванию наблюдаемого сигнала. Заметим, что рассмотренный в данном разделе эффект может проявляться и в случае гофрированных либо шероховатых поверхностей металлов из-за возникновения локального усиления поля и градиентов температуры вблизи резких неоднородностей.

### 3.5 Заключение по Главе 3

В третьей главе было показано, что обобщение теплового механизма генерации ТГц излучения на случай структурированных металлических образцов позволяет интерпретировать достаточно важные особенности этого процесса, установленные в недавних экспериментальных работах. В первой части Главы 3 было подробно

рассмотрено возбуждение поверхностных плазмонов на границе гофрированного металла и вакуума. Было показано, что конечная длительность лазерного импульса даёт основное ограничение на амплитуду плазмона; также были оценены тепловые и дифракционные потери самого плазмона для типичных экспериментальных условий. Включение поверхностных плазмонов в тепловую модель генерации ТГц отклика в качестве дополнительного канала поглощения лазерного излучения позволяет объяснить на микроскопическом уровне резонансное поведение амплитуды ТГц импульса близи точки плазмонного резонанса, а также адекватно оценить величину энергии ТГц сигнала (в той степени, в которой это позволяют сделать имеющиеся данные). Кроме того, учёт дифракционных потерь плазмона даёт интерпретацию наличию оптимальной глубины гофрировки, при превышении которой энергия ТГц импульса уже не растёт.

В разделе 3.4. приведено замечание о возможности обобщения тепловой модели генерации ТГц отклика на случай металлических наночастиц. Соответствующие эксперименты уже были проведены в течение последних 5-7 лет несколькими группами, однако теоретической интерпретации наблюдаемого эффекта продемонстрировано не было. Выполненная оценка показала, что перераспределение тепла в металлической наночастице может приводить к генерации достаточно интенсивных полей терагерцового диапазона. В рамках представлений, развитых во второй и третьей главах, массив металлических наночастиц, которые были неравномерно нагреты фемтосекундным лазерным импульсом, представляет собой массив излучающих диполей с характерным временем изменения поляризации порядка 0,1–1 пикосекунды.

## Заключение

В диссертационной работе были теоретически исследованы возможные механизмы генерации терагерцового излучения при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов на металлы и металлические структуры. Были получены следующие основные результаты:

1. Рассмотрен мгновенный квадратичный механизм генерации терагерцового излучения при взаимодействии лазерного импульса с гладкой поверхностью металла, получены аналитические выражения для возникающих низкочастотных полей. Показано, что в рамках гидродинамического описания холодного электронного газа (с учётом только стрикционных нелинейных эффектов) удаётся качественно интерпретировать ряд экспериментально наблюдаемых особенностей оптико-терагерцовой конверсии: поляризацию и диаграмму направленности ТГц излучения, а также зависимость эффективности генерации от угла падения оптического импульса и его поляризации. Выполнено обобщение модели на случай полуметалла висмута – среды с анизотропной эффективной массой носителей заряда; показано, что при уменьшении эффективной массы электрона квадратичный нелинейный отклик резко возрастает.

2. Развита тепловая модель терагерцового отклика металла на воздействие фемтосекундных лазерных импульсов, получены аналитические выражения для электромагнитных полей, возбуждаемых градиентом температуры электронов. Продемонстрировано, что учёт неоднородного нагрева электронного газа позволяет дать объяснение запаздывающему характеру ТГц отклика и его пространственной нелокальности.

3. Показано, что найденная экспериментально зависимость энергии терагерцового сигнала от энергии лазерного импульса может быть интерпретирована как следствие температурной зависимости частоты столкновений электронов. На основе данного результата предложен новый метод определения частоты столкновений электронов в металлах, опирающийся на измерение характеристик терагерцового отклика.

4. Выполнено обобщение теплового механизма генерации ТГц излучения на случай металла с гофрированной поверхностью. Продемонстрировано, что включение

поверхностных плазмонов в тепловую модель ТГц отклика в качестве дополнительного канала поглощения лазерного излучения позволяет объяснить резонансное поведение амплитуды сигнала при выполнении условий плазмонного резонанса для оптической волны и получить оценку абсолютной величины эффекта. Учёт дифракционных потерь плазмона позволяет дать интерпретацию экспериментально наблюдаемого факта – наличия определённой амплитуды гофрировки, при превышении которой энергия ТГц импульса уже не растёт при углублении гофрировки.

5. Проведён качественный анализ ТГц отклика массива металлических наночастиц на основе представлений о тепловом механизме генерации. Выполнена аналитическая оценка, показывающая, что в типичных экспериментальных условиях перераспределение тепла в металлической наночастице должно сопровождаться возникновением достаточно интенсивных полей терагерцового диапазона.

## Список литературы

1. Взаимодействие лазерного излучения с веществом / В. П. Вейко, М. Н. Либенсон, Г. Г. Червяков, Е. Б. Яковлев. — Москва : ФИЗМАТЛИТ, 2008. — 312 с.
2. Строганов, В. И. Нелинейная металлооптика / В. И. Строганов. — Новосибирск : Изд. Наука, 1977. — 94 с.
3. Анисимов, С. И. Избранные задачи теории лазерной абляции / С. И. Анисимов, Б. С. Лукьянчук // Успехи физических наук. — 2002. — №172. — с. 301.
4. Ablation of solids by femtosecond lasers: Ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics / E. G. Gamaly, A. V. Rode, B. Luther-Davies, V. T. Tikhonchuk // Physics of Plasmas. — 2002. — №9. — с. 949.
5. Урюпин, С. А. Генерация низкочастотного излучения плотной горячей плазмой при пондеромоторном воздействии короткого лазерного импульса/ С. А. Урюпин, А. А. Фролов // Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2012. — Т. 141, вып. 5. — С. 1006.
6. Горбунов, Л. М. Низкочастотное переходное излучение короткого лазерного импульса на границе плазмы / Л. М. Горбунов, А. А. Фролов // Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2006. — Т. 129, вып. 6. — С. 1018—1025.
7. Урюпин, С. А. Возбуждение поверхностных волн в проводнике коротким лазерным импульсом / С. А. Урюпин, А. А. Фролов // Квантовая электроника. — 2013. — Т. 43, №12. — С. 1132—1138.
8. Урюпин, С. А. Генерация поверхностных волн и низкочастотного излучения при воздействии на проводник импульса лазерного излучения, сфокусированного цилиндрической линзой / С. А. Урюпин, А. А. Фролов // Квантовая электроника. — 2014. — Т. 44, №9. — С. 866—872.
9. Генерация терагерцевого излучения при отражении фемтосекундных лазерных импульсов от поверхности металла / В.А. Миронов, И.В. Оладышкин, Е.В. Суворов, Д.А. Фадеев // Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2014. — Т. 146, вып. 2. — С. 211.
10. Rudnick, J. Second-Harmonic Radiation from Metal Surfaces / J. Rudnick, E. A. Stern // Physical review B. — 1971. — Vol.4, № 12. — P. 4274.
11. Analysis of second-harmonic generation at metal surfaces / J. E. Sipe, V. C. Y. So, M. Fukui, G. I. Stegeman // Physical review B. — 1980. — Vol.21, № 10. — P. 4389.
12. Maytorena, J. A. Hydrodynamic model for sum and difference frequency generation at metal surfaces / J. A. Maytorena, W. L. Mochan, B. S. Mendoza // Physical review B. — 1998. — Vol.57, № 4. — P. 2580.
13. Исаков, В. А. Поглощение фемтосекундного лазерного импульса металлами и возможность определения эффективных частот электрон-электронных столкновений/ В. А. Исаков, А. П. Канавин, С. А. Урюпин // Квантовая электроника. — 2006. — Т. 36, №10. — С. 928—932.

14. Поверхностные поляритоны : электромагнитные волны на поверхностях и границах раздела сред : сб. статей / под ред. В. М. Аграновича, Д. Д. Миллса. — М.: Наука, 1985. — 525 с.
15. Иногамов, Н.А. Теплопроводность металлов с горячими электронами / Н.А. Иногамов, Ю.В. Петров // Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2010 г. — Т. 137, Вып. 3. — С. 505.
16. Tonouchi, M. Cutting-edge terahertz technology / M. Tonouchi // Nature photonics. — 2007. — №1. — P. 97.
17. Reimann, K. Table-top sources of ultrashort THz pulses // Reports on Progress in Physics. — 2007. — Vol.70, № 10. — P. 1597.
18. Hübner, W. Theory for the nonlinear optical response of transition metals: Polarization dependence as a fingerprint of the electronic structure at surfaces and interfaces / W. Hübner, K. H. Bennemann, K. Böhmer // Physical review B. — 1994. — Vol.50, № 23. — P. 17597.
19. Kadlec, F. Optical rectification at metal surfaces / F. Kadlec, P. Kuzel, J.-L. Coutaz // Optics Letters. — 2004. — Vol.29, № 22. — P. 2674—2676
20. Kadlec, F. Study of terahertz radiation generated by optical rectification on thin gold films / F. Kadlec, P. Kuzel, J.-L. Coutaz // Optics Letters. — 2005. — Vol.30, № 11. — P. 1402—1404.
21. Terahertz emission via ultrashort-pulse excitation of magnetic metal films / D. J. Hilton, R. D. Averitt, C. A. Meserole, G. L. Fisher, D. J. Funk, J. D. Thompson, A. J. Taylor // Optics Letters. — 2004. — Vol.29, № 15. — P. 1805—1807.
22. Short-pulse terahertz radiation from high-intensity-laser-produced plasmas / H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, R. W. Falcone // Physical review E. — 1994. — Vol.49, № 1. — P. 671.
23. Cook, D. J. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air / D. J. Cook and R. M. Hochstrasser // Optics Letters. — 2000. — Vol.25, № 16. — P. 1210—1212.
24. Xie, X. Coherent Control of THz Wave Generation in Ambient Air / Xu Xie, Jianming Dai, X.-C. Zhang // Physical review letters. — 2006. — Vol.96, № 7. — P. 075005.
25. Terahertz emission from ultrafast ionizing air in symmetry-broken laser fields / K. Y. Kim, J. H. Glowia, A. J. Taylor and G. Rodriguez // Optics express. — 2007. — Vol.15, № 8. — P. 4577—4584.
26. Coherent control of terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser-gas interactions / K. Y. Kim, A. J. Taylor, J. H. Glowia, and G. Rodriguez // Nature Photonics. — 2008. — Vol. 2. — P. 605—609.
27. Tailoring terahertz radiation by controlling tunnel photoionization events in gases / I. Babushkin, S. Skupin, A. Husakou, C. Köhler, E. Cabrera-Granado, L. Bergé, J. Herrmann // New Journal of Physics. — 2011. — Vol. 13. — P. 123020.
28. 3D Numerical Simulations of THz Generation by Two-Color Laser Filaments / L. Bergé, S. Skupin, C. Köhler, I. Babushkin, J. Herrmann // Physical review letters. — 2013. — Vol.110, № 7. — P. 073901.
29. Generation of Terahertz Radiation by the Optical Breakdown Induced by a Bichromatic Laser Pulse / R.A. Akhmedzhanov, I.E. Ilyakov, V.A. Mironov, E.V. Suvorov, D.A. Fadeev, B.V. Shishkin // Journal of Experimental and theoretical Physics. — 2009. — Vol.109, № 3. — P. 370—378

30. Fadeev, D. A. On the theory of the generation of terahertz radiation accompanying the optical breakdown of air by femtosecond laser pulses containing the second harmonic / D. A. Fadeev, V. A. Mironov // *Journal of Optical Technology*. — 2010. — Vol.77, № 10. — P. 615—616.
31. Ultrashort laser pulses and electromagnetic pulse generation in air and on dielectric surfaces / P. Sprangle, J. R. Peñano, B. Hafizi, C. A. Kapetanacos // *Physical review E*. — 2004. — Vol.69, № 6. — P. 066415.
32. Nonmonotonic increase in laser-driven THz emissions through multiple ionization events / A. Debayle, P. González de Alaiza Martínez, L. Gremillet, and L. Bergé // *Physical review A*. — 2015. — Vol.91, № 4. — P. 041801(R).
33. Zhang, X. Topological insulators for high-performance terahertz to infrared applications / Xiao Zhang, Jing Wang, Shou-Cheng Zhang // *Physical review B*. — 2010. — Vol.82, № 24. — P. 245107.
34. Dai, J. Terahertz wave generation from thin metal films excited by asymmetrical optical fields / Jianming Dai, X.-C. Zhang // *Optics Letters*. — 2014. — Vol.39, № 4. — P.777.
35. Vicario, C. GV/m Single-Cycle Terahertz Fields from a Laser-Driven Large-Size Partitioned Organic Crystal / C. Vicario, B. Monozslai, C. Hauri // *Physical review letters*. — 2014. — Vol.112, № 21. — P. 213901.
36. Terahertz emission from a metallic surface induced by a femtosecond optic pulse / E. V. Suvorov, R. A. Akhmedzhanov, D. A. Fadeev, I. E. Ilyakov, V. A. Mironov, B. V. Shishkin // *Optics Letters*. — 2012. — Vol.37, № 13. — P. 2520.
37. Terahertz emission from a femtosecond laser focus in a two-color scheme // A. V. Balakin, A. V. Borodin, I. A. Kotelnikov, A. P. Shkurinov // *Journal of the Optical Society of America B*. — 2010. — Vol.27, № 1. — P. 16—26.
38. Yao, X. Efficient Nonlinear Generation of THz Plasmons in Graphene and Topological Insulators / X. Yao, M. Tokman, A. Belyanin // *Physical review letters*. — 2014. — Vol.112, № 5. — P. 055501.
39. Jepsen P. U. Generation and detection of terahertz pulses from biased semiconductor antennas / P. U. Jepsen, R. H. Jacobsen, S. R. Keiding // *Journal of the Optical Society of America B*. — 1996. — Vol.13, № 11. — P. 2424—2436.
40. Four-wave mixing and direct terahertz emission with two-color semiconductor lasers / S. Hoffmann, M. Hofmann, E. Bründermann, M. Havenith, M. Matus, J. V. Moloney, A. S. Moskalenko, M. Kira, S. W. Koch, S. Saito, K. Sakai // *Applied Physics Letters*. 2004. — Vol.84, № 18. — P. 3585.
41. Generation of Terahertz Radiation by Interaction of Intense Femtosecond Laser Pulses with a Metal Surface / R. A. Akhmedzhanov, I. E. Ilyakov, V. A. Mironov, I. V. Oladyshkin, E. V. Suvorov, D. A. Fadeev, B. V. Shishkin // *Radiophysics and Quantum Electronics*. — 2015. — Vol.57, № 11. — P. 807—820.
42. Welsh, G. H. Generation of ultrafast terahertz radiation pulses on metallic nanostructured surfaces / G. H. Welsh, K. Wynne // *Optics Express*. — 2009. — Vol.17, № 4. — P. 2470.



43. Mechanisms of THz generation from silver nanoparticle and nanohole arrays illuminated by 100 fs pulses of infrared light / D. K. Polyushkin, I. Márton, P. Rácz, P. Dombi, E. Hendry, W. L. Barnes // *Physical review B*. — 2014. — Vol.89, № 12. — P. 125426.
44. Terahertz emission from surface-immobilized gold nanospheres / K. Kajikawa, Y. Nagai, Y. Uchiho, G. Ramakrishnan, N. Kumar, G. K. P. Ramanandan, P. C. M. Planken // *Optics Letters*. — 2012. — Vol.37, № 19. — P. 4053—4055.
45. THz Generation from Plasmonic Nanoparticle Arrays / D. K. Polyushkin, E. Hendry, E. K. Stone, W. L. Barnes // *Nano Letters*. — 2011. — Vol.11, № 11. — P. 4718—4724.
46. Welsh, G. H. Terahertz-pulse emission through laser excitation of surface plasmons in a metal grating / G. H. Welsh, N. T. Hunt, K. Wynne // *Physical review letters*. — 2007. — Vol.98, №2. — P. 026803.
47. Emission of terahertz pulses from nanostructured metal surfaces / G. K. P. Ramanandan, G. Ramakrishnan, N. Kumar, A. J. L. Adam, P. C. M. Planken // *Journal of Physics D: Applied Physics*. — 2014. — Vol.47, №37. — P. 374003.
48. Terahertz radiation from bismuth surface induced by femtosecond laser pulses / I. E. Ilyakov, B. V. Shishkin, D. A. Fadeev, I. V. Oladyshkin, V. V. Chernov, A. I. Okhapkin, P. A. Yunin, V. A. Mironov, R. A. Akhmedzhanov // *Optics Letters*. — 2016. — Vol.41, №18. — P. 4289—4292.
49. Ramakrishnan, G. Terahertz generation from graphite / G. Ramakrishnan, R. Chakkittakandy, P. C. M. Planken // *Optics Express*. — 2009. — Vol.17, №18. — P. 16092—16099.
50. MV/cm terahertz pulses from relativistic laser-plasma interaction characterized by nonlinear terahertz absorption bleaching in n-doped InGaAs / S. Mondal, H. A. Hafez, X. Ropagnol, T. Ozaki, // *Optics Express*. — 2017. — Vol. 25, № 15. — P.17511—17523.
51. An investigation on THz yield from laser-produced solid density plasmas at relativistic laser intensities / S. Herzer, A. Woldegeorgis, J. Polz, A. Reinhard, M. Almassrani, B. Beleites, F. Ronneberger, R. Grosse, G. G. Paulus, U. Heubner, T. May, A. Gopal // *New Journal of Physics*. — 2018. — Режим доступа : <http://iopscience.iop.org/article/10.1088/1367-2630/aaada0>, свободный. — Загл. с экрана.
52. Gamaly, E. G. Ultrafast electronic relaxation in superheated bismuth / E. G. Gamaly, A. V. Rode // *New Journal of Physics*. — 2013. — Vol. 15. — P. 013035.
53. Graphene-based devices in terahertz science and technology / T. Otsuji, S. A. Boubanga Tombet, A. Satou, H. Fukidome, M. Suemitsu, E. Sano, V. Popov, M. Ryzhii, V. Ryzhii // *Journal of Physics D: Applied Physics*. — 2012. — Vol. 45, № 30. — P. 303001.
54. Tani, S. Ultrafast Carrier Dynamics in Graphene under a High Electric Field / S. Tani, F. Blanchard, K. Tanaka // *Physical review letters*. — 2012. — Vol.109, № 16. — P. 166603.
55. Photoexcitation cascade and multiple hot-carrier generation in graphene / K. J. Tielrooij, J. C.W. Song, S. A. Jensen, A. Centeno, A. Pesquera, A. Zurutuza Elorza, M. Bonn, L. S. Levitov, F. H. L. Koppens // *Nature Physics*. — 2013. — Vol. 9. — P. 248—252.

56. Optical emission of graphene and electron-hole pair production induced by a strong terahertz field / I. V. Oladyshkin, S. B. Bodrov, Yu. A. Sergeev, A. I. Korytin, M. D. Tokman, A. N. Stepanov // *Physical review B*. — 2017. — Vol. 96, №15. — P. 155401.
57. Bi-directional terahertz emission from gold-coated nanogratings by excitation via femtosecond laser pulses / F. Garwe, A. Schmidt, G. Zieger, T. May, K. Wynne, U. Hübner, M. Zeisberger, W. Paa, H. Stafast, H.-G. Meyer // *Applied Physics B*. — 2011. — Vol.102, №3. — P. 551—554.
58. Миронов, В. А. Конверсия оптического излучения в терагерцевое на поверхности полуметалла / В. А. Миронов, И. В. Оладышкин, Д. А. Фадеев // *Квантовая электроника*. — 2016. — Т. 46, №8. — С. 753—758.
59. Бежанов, С. Г. Генерация нелинейных токов и низкочастотного излучения при взаимодействии лазерного импульса с металлом / С. Г. Бежанов, С. А. Урюпин // *Квантовая электроника*. — 2013. — Т. 43, №11. — С. 1048—1054.
60. Bezhanov, S. G. Free-electron mechanisms of low-frequency radiation generation on metal surfaces / S. G. Bezhanov, S. A. Uryupin // *Optics Letters*. — 2016. — Vol.41, №21. — P. 4975—4978.
61. Bezhanov, S. G. Optical rectification of ultrashort laser pulses at the surface of conducting media / S. G. Bezhanov, S. A. Uryupin // *Journal of the Optical Society of America B*. — 2017. — Vol.34, №12. — P. 2593—2598.
62. Oladyshkin, I. V. Thermal mechanism of laser induced THz generation from a metal surface / I. V. Oladyshkin, D. A. Fadeev, V. A. Mironov // *Journal of Optics*. — 2015. — Vol.17, №7. — P. 075502.
63. Оладышкин, И. В. Диагностика рассеяния электронов в металлах по терагерцовому отклику на фемтосекундные лазерные импульсы / И.В. Оладышкин // *Письма в ЖЭТФ*. — 2016. — Т.103, №7. — С.495—500
64. Абрикосов, А. А. Основы теории металлов / А.А. Абрикосов. — Москва: Наука, 1987. — 520 с.
65. Фальковский, Л. А., Физические свойства висмута / Л.А. Фальковский // *Успехи физических наук*. — 1968. — Т. 94, №1. — С.3-41.
66. Эдельман, В. С., Свойства электронов в висмуте / В.С. Эдельман // *Успехи физических наук*. — 1977. — Т. 123, №10. — С 257—287.
67. Madelung, O. *Semiconductors: Data Handbook* / O. Madelung. — New York: Springer, 2003. — 678 P.
68. Александров, А. Ф. Основы электродинамики плазмы / А. Ф. Александров, Л. С. Богданкевич, А. А. Рухадхе. — Москва: Высшая школа, 1978. — 407 с.
69. Ландау, Л.Д. Теоретическая физика. В 10 т. Т. 8. Электродинамика сплошных сред / Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. — 2-е изд., перераб. и доп. — М.; Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит., 1982. — 621 с.
70. Experimental determination of temperature-dependent electron-electron collision frequency in isochorically heated warm dense gold / C. Fourment, F. Deneuille, D. Descamps, F. Dorchie, S. Petit, O. Peyrusse, B. Holst, V. Recoules // *Physical review b*. — 2014. — Vol.89, №16. — P. 161110.

71. Смирнов, Б. М. Кластерная плазма / Б.М. Смирнов // Успехи физических наук. — 2000. — Т. 170, №5. — С. 495—534.
72. Бежанов, С. Г. Взаимодействие фемтосекундного импульса р-поляризованного излучения с быстро нагреваемым металлом / С. Г. Бежанов, А. П. Канавин, С. А. Урюпин, // Квантовая электроника. — 2011. — Т. 41, №5. — С. 447—452.
73. Ландау, Л.Д. Теоретическая физика. В 10 т. Т. 5. Статистическая физика. Часть I / Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. — 3-е изд., испр. — М.; Наука. Гл. ред. физ. -мат. лит., 1976. — 584 с.
74. Experimental characterization of bi-directional terahertz emission from gold-coated nanogratings / A. Schmidt, F. Garwe, U. Hubner, T. May, W. Paa, M. Zeisberger, G. Zieger, H. Stafast // Applied Physics B. — 2012. — Vol.109, №4. — P. 631—642.