

ОПТИЧЕСКАЯ АНИЗОТРОПИЯ КАК МЕТОД ИЗУЧЕНИЯ СВЕРХБЫСТРЫХ ПРОЦЕССОВ ФАЗОВЫХ ПРЕВРАЩЕНИЙ НА ПОВЕРХНОСТИ ТВЕРДЫХ ТЕЛ

*М. Б. Агранат**, *С. И. Анисимов*, *С. И. Ашитков*, *А. В. Кириллин*,
П. С. Кондратенко, *А. В. Костановский*, *В. Е. Фортос*

*Научно-исследовательский центр теплофизики импульсных воздействий
Российской академии наук
127412, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 23 октября 1997 г.

Разработан новый метод контроля дальнего порядка сильнопоглощающих анизотропных кристаллов, основанный на эффекте преобразования при отражении падающей световой p - (s -) волны в s - (p -) волну за счет оптической анизотропии. Метод позволяет получать информацию о процессах фазовых превращений в тонких (10^{-6} – 10^{-5} см) слоях с высоким временным разрешением (до 10^{-12} с). С помощью лазерных пикосекундных импульсов и электронно-оптической камеры «Агат» на основе данного метода проведено экспериментальное исследование кинетики плавления и рекристаллизации на поверхности цинка и графита. Установлено, что процесс плавления проходит за время ≤ 3 пс, а время рекристаллизации составляет величину порядка 100 пс.

1. ВВЕДЕНИЕ

Развитие пико- и фемтосекундной техники предоставило исключительные возможности для исследования динамики сверхбыстрых процессов фазовых превращений в конденсированных средах [1–5]. Важнейший вопрос при постановке экспериментов данного направления состоит в выборе метода регистрации динамики фазовых превращений. В качестве отклика среды, позволяющего получать информацию о фазовых превращениях, используются различные явления — отражение, излучение, нелинейно-оптические эффекты, спектры комбинационного рассеяния и т. п. Однако такие методы в основном дают информацию об изменении ближнего порядка кристаллической структуры, который может и не изменяться при плавлении или при переходе в аморфное состояние [6]. Электронография, рентгеноструктурный анализ и другие подобные методы изучения дальнего порядка кристаллической структуры не позволяют проводить измерения с высоким временным разрешением, хотя такие попытки уже делаются. Например, в работе [7] с помощью сверхкоротких лазерных импульсов формировался электронный пучок, с помощью которого изучалась динамика изменения кристаллической структуры металла, но с минимальным временным разрешением ~ 50 пс.

В настоящей работе предложен и экспериментально реализован новый метод регистрации динамики сверхбыстрых фазовых превращений на поверхности металлов, основанный на явлении оптической анизотропии. Метод применим к металлам, в ко-

*E-mail: agranat@tiv.phys.msu.su

торых одна из фаз является анизотропной. К ним относятся, например, цинк, кадмий, титан, а также графит. Суть метода состоит в следующем.

При падении на поверхность изотропной среды оптического излучения, поляризованного в плоскости падения или перпендикулярно ей, поляризация отраженного сигнала совпадает с поляризацией падающего. Если же среда представляет собой анизотропный кристалл с осью анизотропии, не лежащей в плоскости падения или перпендикулярно ей, то в отраженном сигнале наряду с основной возникает альтернативная поляризационная компонента, не совпадающая с поляризацией падающего излучения. Данный эффект (поворот плоскости поляризации в отражении) при использовании пико- и фемтосекундной техники дает возможность контроля сверхбыстрой динамики фазовых превращений, когда одна из фаз является анизотропной, например плавления кристалла с ГПУ-структурой. Отметим, что хотя само явление оптической анизотропии широко известно, оно, насколько мы знаем, до сих пор не применялось как метод исследований.

Дальнейшее изложение построено следующим образом. В разд. 2 проведен теоретический анализ характеристик поляризационного эффекта. В разд. 3 описана экспериментальная методика измерений. В разд. 4 представлены результаты экспериментального исследования сверхбыстрого плавления цинка и графита под действием пикосекундных лазерных импульсов. В разд. 5 проведено обсуждение полученных результатов.

2. ОПТИЧЕСКОЕ ОТРАЖЕНИЕ ОТ ПОВЕРХНОСТИ АНИЗОТРОПНОГО МЕТАЛЛА. ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

Рассмотрим отражение монохроматического узконаправленного пучка излучения от плоской границы анизотропного металла. С этой целью воспользуемся импедансным граничным условием [8]:

$$E_{\alpha} = \xi_{\alpha\beta} [\mathbf{Hn}]_{\beta}. \quad (1)$$

Здесь \mathbf{E} и \mathbf{H} — векторы электрического и магнитного полей соответственно; \mathbf{n} — единичный вектор нормали к границе, направленный в глубь металла; греческие индексы в (1) и ниже пробегают два значения, отвечающие декартовым координатам в плоскости границы; $\xi_{\alpha\beta}$ — двумерный тензор поверхностного импеданса, который в немагнитном металле связан с трехмерным тензором диэлектрической проницаемости ε_{ik} соотношением

$$(\xi^2)_{\alpha\beta} = (\varepsilon^{-1})_{\alpha\beta}. \quad (2)$$

В одноосном кристалле, рассмотрением которого мы ограничиваемся в дальнейшем, тензор ε_{ik} может быть представлен в форме

$$\varepsilon_{ik} = \varepsilon(\delta_{ik} + s_i s_k \Delta), \quad (3)$$

где δ_{ik} — трехмерный единичный тензор, \mathbf{s} — единичный вектор, направленный вдоль оси анизотропии, ε — изотропная часть диэлектрической проницаемости, Δ — постоянная оптической анизотропии. В дальнейшем будем считать выполненными неравенства

$$\varepsilon \gg 1, \quad \Delta \ll 1. \quad (4)$$

Подстановка выражения (3) в (2) с учетом неравенств (4) приводит к соотношению для тензора поверхностного импеданса одноосного металлического кристалла

$$\xi_{\alpha\beta} = \xi \left(\delta_{\alpha\beta} - \frac{1}{2} \nu_{\alpha} \nu_{\beta} \Delta \sin^2 \psi \right), \quad (5)$$

в котором

$$\xi = 1/\sqrt{\epsilon} \quad (6)$$

— изотропная часть поверхностного импеданса, ψ — угол между осью анизотропии и нормалью к границе, ν — единичный двумерный вектор вдоль проекции оси анизотропии на поверхность границы металла. В монокристаллическом образце угол ψ и вектор ν являются постоянными. В поликристалле они — функции координат. Приступая к вычислению характеристик отражения, начнем со случая монокристалла.

Обозначим через E_p, E_s амплитуды электрического поля падающего сигнала, отвечающие поляризациям в плоскости падения (p -волна) и перпендикулярно этой плоскости (s -волна). Соответствующие амплитуды в зеркально отраженном сигнале будем обозначать E'_p, E'_s . При падении p -поляризованного сигнала ($E_s = 0$) тангенциальные составляющие электрического и магнитного полей на поверхности металла имеют вид

$$\mathbf{E}_t = (E_p - E'_p)\mathbf{l} \cos \theta + E'_s[\mathbf{nl}], \quad (7)$$

$$\mathbf{H}_t = (E_p + E'_p)[\mathbf{nl}] + E'_s \mathbf{l} \cos \theta. \quad (8)$$

Здесь $\mathbf{l} = \mathbf{k}_t/|\mathbf{k}_t|$ — единичный вектор вдоль линии пересечения плоскости падения с границей раздела, $\mathbf{k}_t = \mathbf{k} - \mathbf{n}(\mathbf{n}\mathbf{k})$ — тангенциальная составляющая волнового вектора \mathbf{k} , $k = 2\pi/\lambda$, λ — длина волны излучения.

Подстановка выражений (7), (8) в граничное условие (1) с учетом формулы (5) приводит к системе уравнений для определения амплитуд E'_p, E'_s . Решение для амплитуды E'_p в силу неравенств (4) с точностью до малых поправок совпадает с соответствующим выражением из формул Френеля [8]. Величина E'_s описывает интересующий нас эффект — обусловленное оптической анизотропией отражение с изменением поляризации. Количественной мерой эффекта является отношение интенсивности s -компоненты в отраженном сигнале к интенсивности падающего p -поляризованного сигнала, $R_{p \rightarrow s}$. Результат вычисления этой характеристики имеет вид

$$R_{p \rightarrow s} = \frac{1}{4} \frac{|\xi|^2 |\Delta|^2 \cos^2 \theta}{|\cos \theta + \xi|^2} \sin^4 \psi \sin^2 2\phi. \quad (9)$$

Здесь ϕ — угол между векторами \mathbf{l} и ν , другими словами, угол между двумя перпендикулярными границе металла плоскостями, одна из которых содержит луч падающего сигнала (плоскость падения), а вторая — ось оптической анизотропии металла (плоскость анизотропии).

Аналогичное вычисление для отношения интенсивности p -компоненты в отражении к интенсивности s -поляризованного падающего сигнала ($R_{s \rightarrow p}$) в приближении (4) приводит к равенству

$$R_{s \rightarrow p} = R_{p \rightarrow s}. \quad (10)$$

Обратим внимание на два важных следствия формул (9), (10). Первое из них состоит в том, что при полном повороте монокристаллического образца вокруг оси, совпадающей

с нормалью к отражающей границе, интенсивность альтернативной поляризационной компоненты в отраженном сигнале испытывает четыре максимума и четыре минимума, причем минимумы отвечают исчезновению эффекта. Максимум эффекта имеет место, когда угол ϕ между плоскостями падения и анизотропии имеет нечетную кратность углу $\pi/4$, а отсутствие эффекта — в случае, когда две указанные плоскости совпадают либо перпендикулярны друг другу.

Второе следствие формул (9), (10) — это сильная зависимость эффекта от угла между осью анизотропии и нормалью к отражающей границе, описываемая множителем $\sin^4 \psi$. При совпадении оси анизотропии с нормалью эффект пропадает.

Перейдем к анализу процесса отражения от поликристаллического образца анизотропного металла, считая его границу по-прежнему плоской. Вследствие непостоянства поверхностного импеданса в плоскости границы анизотропная часть отражения происходит без сохранения проекции волнового вектора на границу, в силу чего эта часть отражения является не зеркальной, а диффузной. Предположим сначала, что размер кристаллических зерен (a) удовлетворяет условию $\lambda/2\pi \ll a \ll D$, где D — размер лазерного пятна. Кроме того, будем считать, что распределение зерен статистически однородно и изотропно. Обозначим через $dR(p, \mathbf{k}_t \rightarrow s, \mathbf{k}'_t)$ и $dR(s, \mathbf{k}_t \rightarrow p, \mathbf{k}'_t)$ отношения интенсивностей альтернативной поляризационной компоненты, отраженной в элемент телесного угла $d\Omega$ в направлении тангенциальной составляющей волнового вектора отраженного сигнала \mathbf{k}'_t , к интенсивности падающего сигнала.

Проделанный выше вывод для монокристалла легко обобщается на случай поликристалла с плоской границей, если вторые справа слагаемые в (7), (8) заменить на соответствующие им интегралы Фурье по тангенциальной составляющей волнового вектора отраженного сигнала \mathbf{k}_t . Решение возникшей после этого из граничного условия (1) системы уравнений приводит к следующему выражению для определенных выше относительных величин интенсивности альтернативных поляризационных компонент в отражении:

$$dR(p, \mathbf{k}_t \rightarrow s, \mathbf{k}'_t) = dR(s, \mathbf{k}_t \rightarrow p, \mathbf{k}'_t) = \frac{1}{4} \frac{|\xi|^2 |\Delta|^2 \cos^2 \theta}{|\cos \theta + \xi|^2} K(\mathbf{k}'_t - \mathbf{k}_t) d\Omega. \quad (11)$$

Здесь

$$K(\mathbf{k}'_t - \mathbf{k}_t) = \frac{k^2 \cos \theta}{4\pi^2} \int d\eta \exp \{-i(\mathbf{k}'_t - \mathbf{k}_t)\eta\} \langle \sin^2 \psi(\mathbf{r} + \boldsymbol{\eta}) \sin 2\phi(\mathbf{r} + \boldsymbol{\eta}) \sin^2 \psi(\mathbf{r}) \sin 2\phi(\mathbf{r}) \rangle_{\mathbf{r}}.$$

Символ $\langle \dots \rangle_{\mathbf{r}}$ обозначает усреднение по координате \mathbf{r} в плоскости лазерного пятна. Из выражения (11) следует, что альтернативно поляризованный отраженный сигнал имеет дополнительную по сравнению с падающим угловую расходимость

$$\delta\theta \sim \lambda/2\pi a. \quad (12)$$

Вытекающее из (11) выражение для интегральных по телесному углу относительных величин интенсивности альтернативно поляризованного отраженного сигнала отличается от (9) заменой

$$\sin^4 \psi \sin^2 2\phi \rightarrow 1/2(\sin^4 \psi). \quad (13)$$

Не выписывая здесь более громоздких выражений для мелкозернистого поликристалла, отвечающего условию

$$a \ll \lambda/2\pi,$$

заметим, что в этом случае обусловленная оптической анизотропией диффузная часть рассеяния занимает весь соответствующий полупространству объем телесных углов 2π . При этом в ней наряду с альтернативной поляризацией имеется теперь и основная. Интегральная же интенсивность альтернативно поляризованного отраженного излучения в сравнении с таковой для крупнозернистого поликристалла имеет дополнительный порядок малости $\sim (2\pi a/\lambda)^2$.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Оптическая схема экспериментальных измерений приведена на рис. 1.

Эксперименты проводились с помощью лазерного комплекса ЛИТ-5. Лазерная установка комплекса, основанная на многокаскадной (ВРМБ и ВКР) временной компрессии исходного наносекундного импульса Nd:YAG-лазера, генерировала четыре жесткосинхронизированных по времени импульса с параметрами $\tau_1 \sim 200$ фс, $\lambda_1 = 1000$ нм; $\tau_2 \sim 1$ пс, $\lambda_2 = 780$ нм; $\tau_3 \sim 20$ пс, $\lambda_3 = 630$ нм; $\tau_4 \sim 500$ пс, $\lambda_4 = 530$ нм с частотой повторения до 25 Гц и энергией (при τ_1 и τ_2) до 1 мДж. Контроль параметров осуществлялся с помощью измерительной системы комплекса, включающей фотодатчики энергии импульсов, электронно-оптическую камеру «Агат» с предельным временным разрешением ~ 3 пс, автокоррелятор с разрешением ~ 50 фс, систему измерений спектра импульса. Все измерения, в том числе и диагностические, поступали на многоканальный цифровой блок считывания и обработки информации, состоящий из нескольких высокочувствительных цифровых ССD-видеокамер (на ПЗС-матрицах) и входов аналоговых сигналов, блока синхронизации считывания информации, блока управления лазерной установкой и компьютера, позволяющего управлять установкой по заданной программе, снимать и обрабатывать одновременно информацию с выхода электронно-оптической камеры, осциллографа, автокоррелятора, датчиков энергии, фотодатчиков, спектральных приборов.

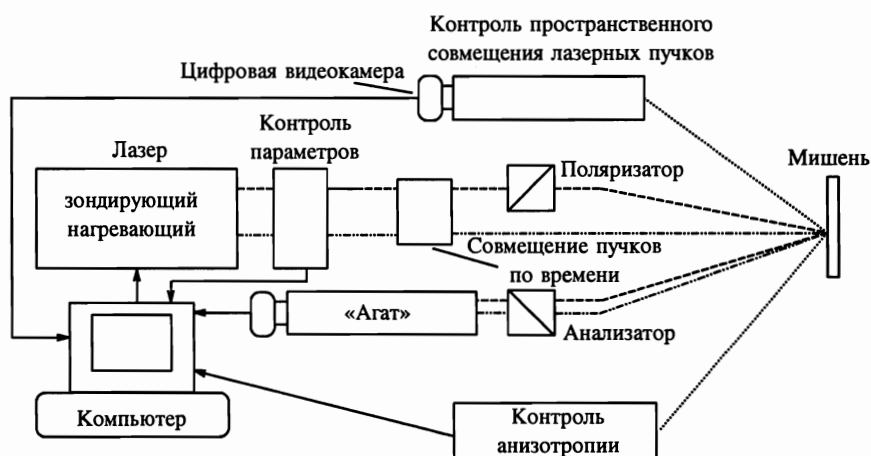


Рис. 1. Оптическая схема измерений

Регистрация динамики отражения проводилась с помощью электронно-оптической камеры «Агат» с временным разрешением 3 пс и 10 пс. В качестве нагревающего использовался лазерный импульс с параметрами $\tau_2 \sim 1$ пс, $\lambda_2 = 780$ нм. Зондирующим был импульс с параметрами $\tau_4 \sim 500$ пс, $\lambda_4 = 530$ нм. Нагревающий импульс фокусировался в пятно диаметром 100–300 мкм, зондирующий — в пятно диаметром 50 мкм. Минимальный размер пятна зондирующего импульса определялся чувствительностью электронно-оптической камеры и потоком энергии, который должен быть намного ниже порога разрушения, что проверялось при многократном облучении. Контроль совмещения пятен нагревающего и зондирующего импульсов осуществлялся с помощью CCD-камеры через микроскоп с увеличением $70\times$. Зондирующий импульс был поляризован в плоскости падения (p -волна), угол падения составлял величину не более 15° . На входную щель камеры направлялся отраженный зондирующий импульс, пропущенный через скрещенный анализатор (s -волна), отраженный зондирующий импульс (p -волна), падающий зондирующий импульс и отраженный нагревающий импульс, служивший в качестве временного репера. На выходе камеры можно было наблюдать различную комбинацию этих импульсов или все их вместе. Поляризационный контраст измерительной схемы при скрещенных поляризаторе и анализаторе составлял величину $\sim 10^5$, что значительно больше контраста, требуемого для проведения измерений. Все измерения проводились на воздухе.

Контроль оптической анизотропии исследуемой области поверхности кристалла проводился в отсутствие нагрева по излучению гелий-неонового лазера. С помощью фотоумножителей измерялось отношение интенсивностей s - и p -компонент отраженного излучения в зависимости от угла поворота мишени вокруг нормали. Таким образом измерялся коэффициент преобразования ($R_{p \rightarrow s}$) энергии из p -волны в s -волну в зависимости от угла ϕ между плоскостью падения и плоскостью анизотропии.

4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

4.1. Цинк

Исследования проводились с монокристаллом Zn, поверхность которого полировалась, затем обрабатывалась травлением в растворе азотной кислоты. Зондирующий и нагревающий лазерные импульсы фокусировались на поверхность, плоскость которой содержит ось симметрии C .

С целью идентификации поляризационного эффекта вначале были проведены измерения отражения зондирующего излучения на холодном образце цинка (не подвергнутому воздействию греющего лазерного импульса). На рис. 2 в полярной системе координат представлена нормированная на единицу в максимуме экспериментальная зависимость коэффициента преобразования $R_{p \rightarrow s}$ от угла ϕ . Здесь же изображена теоретическая зависимость величины $R_{p \rightarrow s}$ от ϕ , соответствующая функции $\sin^2 2\phi$. Изображение обеих зависимостей ограничено первым квадрантом.

Результаты этих измерений показали наличие поляризационного эффекта в отражении от границы ГПУ-кристалла Zn. Установлено, что в соответствии с теоретическим выражением (9) нормаль к границе образца в отношении зависимости коэффициента преобразования $R_{p \rightarrow s}$ является осью симметрии четвертого порядка, т. е. $R_{p \rightarrow s}(\phi + \pi/2) = R_{p \rightarrow s}(\phi)$.

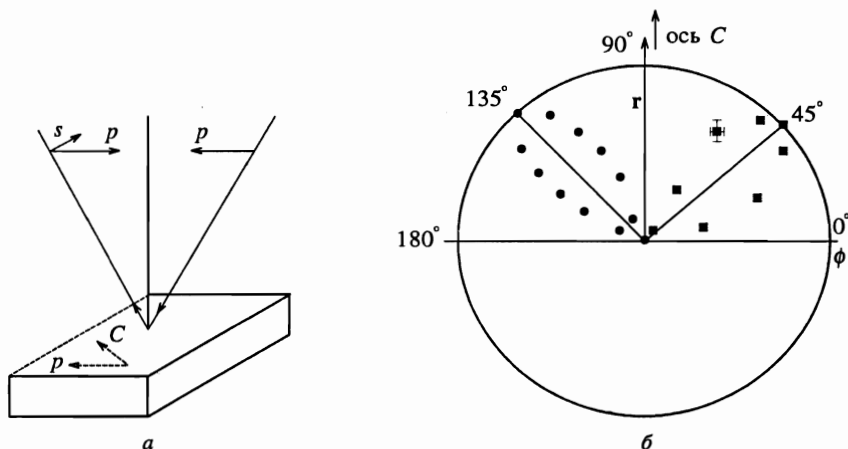


Рис. 2. Измерение оптической анизотропии: *a* — отражение от поверхности анизотропного металла, *b* — $R_{p \rightarrow s}(\phi)$, ■ — эксперимент (Zn), • — расчет ($\sin^2 2\phi$)

Как видно из рис. 2, экспериментальная и теоретическая зависимости практически совпадают. Максимальное значение коэффициента преобразования интенсивности *p*-волны в *s*-волну $R_{p \rightarrow s}$ составляет величину $\approx 10^{-2}$ при угле $\phi = \pi/4$. Минимальное значение $R_{p \rightarrow s} = 10^{-3}$ (при $\phi = 0, \pi/2$) обусловлено неоднородностями поверхности или погрешностью измерений угла ϕ , так как контраст оптической схемы измерений значительно выше.

Измерение кинетики отражения на поверхности цинка проводилось при $\phi = \pi/4$ (максимум $R_{p \rightarrow s}$). Величина пороговой плотности энергии F_0 нагревающего импульса определялась по появлению на исследуемой поверхности пятна разрушения диаметром ≈ 60 мкм. Распределение энергии в пятне фокусировки близко к гауссовскому: $F = F_m \exp(-d^2/d_0^2)$, где F_m — максимум потока энергии в центре пятна. При увеличении потока энергии F до значения, в 2–3 раза превышающего F_0 , диаметр пятна достигал величины $2d_0 \approx 200$ мкм и при дальнейшем увеличении F оставался практически постоянным. Абсолютная величина порога разрушения составила $F_0 \approx 0.05$ Дж/см². Необходимо отметить, что в наших экспериментах не ставилась цель точного измерения величины порогового потока энергии. Относительное изменение величины порога разрушения определялось с погрешностью не более 10%.

Регистрация временной зависимости *s*- и *p*-компонент поляризации отраженного зондирующего излучения проводилась в диапазоне изменения потока энергии нагревающего импульса $F_0 < F < 10F_0$ в основном при однократном облучении участка исследуемой поверхности. Статистическая обработка результатов измерений (≈ 500 фотохронограмм) в условиях неплохой воспроизводимости показала следующее.

1. При потоках энергии нагревающего импульса $F_0 < F < 5F_0$ одновременно с приходом этого импульса наблюдается быстрый спад до уровня шума отраженной *s*-компоненты с характерной длительностью < 3 пс. Спустя интервал времени ~ 100 –300 пс *s*-компонента восстанавливается полностью или частично в зависимости от потока энергии нагревающего импульса. Временная форма *p*-компоненты отраженного зондирующего импульса с приходом нагревающего импульса не изменяется. Характерные фотохронограммы приведены на рис. 3а. На рис. 4 показаны временные зави-

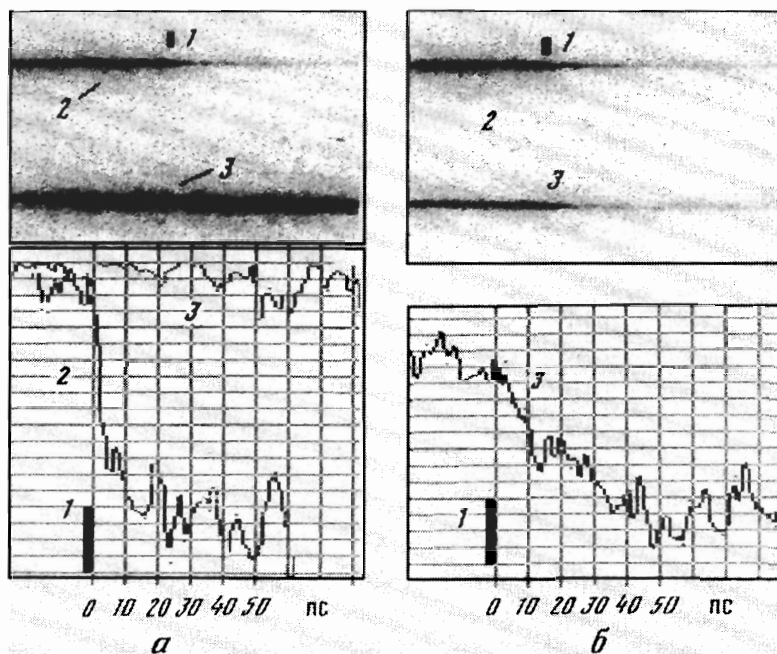


Рис. 3. Характерные фотохронограммы нагревающего импульса (1), s - (2) и p - (3) компонент отраженного зондирующего импульса при потоках энергии нагревающего импульса $F < 5F_0$ (а) и $F > 5F_0$ (б) для монокристалла цинка

симости интенсивности s -компоненты, полученные в результате обработки данных с учетом временной формы зондирующего импульса.

2. При увеличении плотности энергии нагревающего импульса до значений, в 3–5 раз превышающих F_0 , наряду с изменением s -компоненты наблюдается уменьшение p -компоненты отраженного зондирующего импульса с характерным временем ~ 10 –50 пс, сокращающимся с ростом F . Восстановления интенсивностей p - и s -волн не наблюдается. Характерные фотохронограммы представлены на рис. 3б.

3. Оптическая анизотропия ($R_{p \rightarrow s}(\phi)$) в области нагрева после однократного облучения нагревающим импульсом с потоком энергии, близким к пороговому, восстанавливается до первоначального значения. При многократном облучении наблюдается увеличение $R_{p \rightarrow s}$ до значения $\sim 10^{-1}$ (при начальном значении $\sim 10^{-2}$), но зависимость от угла ϕ исчезает, причем количество облучений N , вызывающее этот эффект, уменьшается с увеличением потока энергии нагревающего импульса вплоть до величины $N = 1$ при потоках $> 5F_0$. С помощью электронного микроскопа изучалась структура поверхности при однократном и многократном облучении при $F \sim 3F_0$. При однократном воздействии нагревающего импульса видно образование микрообластей с линейными размерами ~ 10 мкм, а при многократном воздействии образуется зернистая структура с размерами зерен ~ 1 мкм. Интенсивность отраженного излучения зондирующего импульса (интегрально по времени, без нагрева) при этом сильно уменьшается, что связано с диффузным рассеянием, обусловленным изменением структуры поверхности.

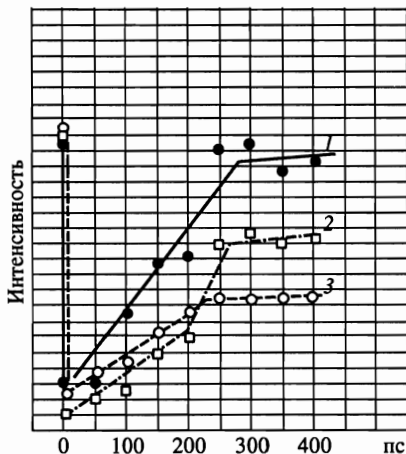


Рис. 4. Зависимость интенсивности s -волны от времени задержки относительно нагревающего импульса при различных потоках энергии нагревающего импульса: 1 — $F \sim 2F_0$; 2 — $F \sim 4F_0$; 3 — $F \sim 5F_0$

4.2. Графит

Эксперименты проводились с квазиоднокристаллом пирографита (УПВ-1-ТМО). Исследуемая поверхность, плоскость которой содержит ось симметрии, предварительно подвергалась лазерной очистке путем многократного воздействия нагревающим импульсом с потоком энергии выше порогового.

Результаты измерения оптической анизотропии показали, что максимальное значение $R_{p \rightarrow s}$ составляет величину $\approx 3 \cdot 10^{-2}$ при $\phi = \pi/4$, т. е. больше, чем у цинка, но зависимость от угла ϕ менее резкая: $R_{p \rightarrow s}(\phi = \pi/4)/R_{p \rightarrow s}(\phi = 0) = 3-4$. Многократное лазерное воздействие здесь в отличие от цинка не влияло на зависимость $R_{p \rightarrow s}(\phi)$.

Измерения временной зависимости интенсивностей s - и p -компонент в отражении зондирующего лазерного импульса после прихода нагревающего сигнала проводились аналогично описанному выше для цинка, но в одной и той же области поверхности при различных потоках энергии нагревающего импульса. Результаты измерений показали следующее.

1. Воспроизводимость результатов намного хуже, чем у цинка, что, вероятно, связано с неоднородностью структуры и различных физических параметров кристалла в плоскостях, содержащих ось симметрии.

2. Пороговый поток энергии нагревающего импульса составил величину $F_0 \approx \approx 0.1$ Дж/см², близкую к той, что была установлена в [3].

3. В узком диапазоне потоков энергии нагревающего импульса $F_0 < F < 2F_0$ одновременно с его приходом наблюдается быстрое уменьшение интенсивности s -компоненты с характерным временем < 3 пс и последующим восстановлением ее до интенсивности близкой по значению к первоначальной величине за интервал времени $\sim 100-150$ пс. Временная форма интенсивности p -компоненты при отражении не меняется. Характерные фотохронограммы приведены на рис. 5.

4. При увеличении потока энергии нагревающего импульса $F > 2F_0$ наряду с s -компонентой происходит также быстрый спад интенсивности p -компоненты в отраженном зондирующем сигнале. Характерное время исчезновения s -компоненты также < 3 пс, а временной спад p -компоненты более плавный, подобный наблюдаемому в работах [3, 4].

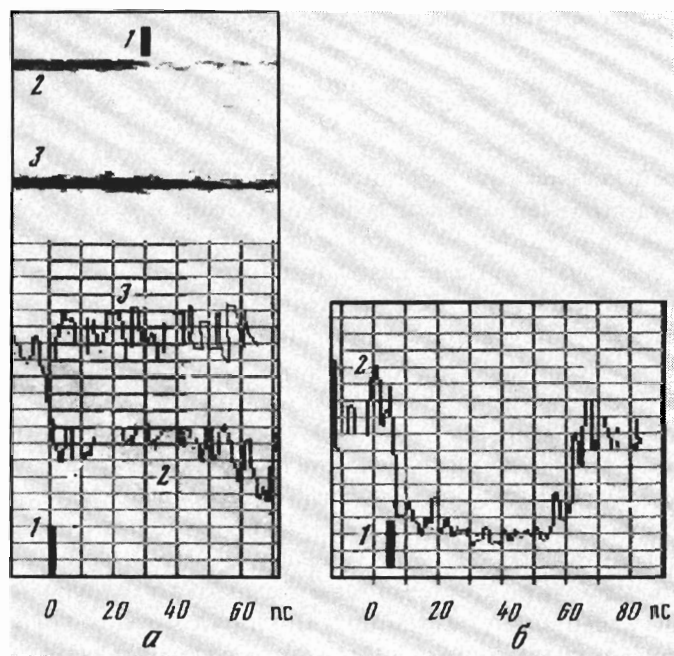


Рис. 5. Характерные фотохронограммы s - (2) и p - (3) компонент отраженного зондирующего импульса при потоке энергии F нагревающего импульса (1) $F_0 < F < 2F_0$: a — уменьшение s -компоненты при плавлении графита; b — восстановление s -компоненты при рекристаллизации (обработка с учетом временной формы зондирующего импульса). Временное разрешение ~ 3 пс

5. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Теоретический анализ изложенных результатов основан на модели, разработанной в [9, 10]. Падающий нагревающий импульс поглощается вырожденным электронным газом, температура которого во время действия импульса много больше температуры решетки. Для оценки пространственного масштаба и абсолютного значения электронной температуры воспользуемся выражениями (14) из [10]:

$$T_e(0, t) = \left(\frac{3q_a^2 T_0}{2\alpha\kappa_0} \right)^{1/3}, \quad \delta(t) = \left(\frac{18q_a\kappa_0}{\alpha^2 T_0} \right)^{1/3}, \quad (14)$$

где $q_a(t)$ — поглощенная лазерная интенсивность, α — параметр обмена энергией между электронами и решеткой, κ_0 — теплопроводность металла в равновесном состоянии, T_0 — начальная (комнатная) температура. Выражения (14) применимы, когда толщина нагретого поверхностного слоя больше, чем глубина скин-слоя. Полагая $q_a \approx 10^{11}$ Вт/см², $\kappa_0 \approx 1$ Вт/см·К, $\alpha \approx 10^{12}$ Вт/см³·К и $T_0 \approx 300$ К, получаем $T_e \approx 1.6 \cdot 10^4$ К и $\delta \approx 1.8 \cdot 10^{-5}$ см. Нагрев решетки этого слоя происходит в течение нескольких пикосекунд для рассматриваемых материалов. Максимальная температура

решетки на поверхности образца оценивается с помощью выражения (25) из [10]:

$$T_{im} \approx T_0 + \frac{F_a}{c_i} \frac{\beta \mu}{\beta + \mu}, \quad \beta = \sqrt{\frac{\alpha}{\kappa_0}}, \quad (15)$$

где F_a — плотность поглощенной энергии лазерного излучения, μ — коэффициент поглощения, c_i — удельная теплоемкость решетки. Полагая $\mu \approx 3 \cdot 10^5 \text{ см}^{-1}$, получаем $T_{im} = 2500 \text{ К}$ для Zn и $T_{im} = 6100 \text{ К}$ для углерода при пороге разрушения (мы полагаем, что усредненный по времени коэффициент отражения для Zn и C составляет величину 0.5 и 0.3 соответственно). Каждая из этих температур существенно превышает температуры плавления соответствующих материалов.

Так как нагрев мишени происходит за короткое время, плотность вещества остается неизменной в течение временного интервала порядка δ/c_s , который требуется волне разрежения, для того чтобы пройти нагретый поверхностный слой. Здесь c_s — скорость звука в нагретом веществе. В течение указанного времени (в нашем случае несколько десятков пикосекунд) нагретый слой находится под давлением, величина которого может быть оценена как $P \approx \Gamma(\rho_0)E_T$, где $\Gamma(\rho_0)$ — коэффициент Грюнрайзена при начальной плотности ρ_0 , E_T — энергия лазерного импульса, поглощенная в единице объема. Оценки показывают, что это давление достигает величины до 30 кбар для Zn и 150 кбар для C при пороге разрушения. Последнее значение приблизительно согласуется с оценками, проведенными в [11]. Эта величина давления находится выше тройной точки графит–алмаз–жидкость на фазовой диаграмме углерода. Необходимо отметить, что процесс электрон–решеточной релаксации слабо сказывается на давлении, так как парциальные значения электронного и решеточного давлений являются, по определению, пропорциональными соответствующим плотностям энергии, в то время как полная энергия является постоянной величиной.

Чтобы произошли изменения в отражении, обусловленные плавлением, кристаллическая структура внутри скин-слоя должна быть разрушена. При малом перегреве, $T_i - T_m \ll T_m$, фронт плавления распространяется от поверхности в глубь кристалла. Скорость этого фронта ниже, чем скорость звука [12], поэтому время, которое требуется волне плавления для прохождения скин-слоя, имеет величину по крайней мере порядка нескольких десятков пикосекунд. Наши эксперименты показывают, однако, что s -компонента отраженного зондирующего импульса убывает за время менее 3 пс после прихода нагревающего импульса. Это означает, что плавление происходит в большем (чем скин-слой) объеме материала в результате гомогенного зародышеобразования. Этот процесс изучался в [13] с учетом изменения энергии активации, связанного с деформацией кристалла в окрестности растущего зародыша. Было показано, что при определенных условиях можно ожидать формирования несферических зародышей. Этот анализ, однако, не может быть непосредственно применен к случаю углерода, так как для этого материала в диапазоне давлений более 70–80 кбар жидкость является более плотной, чем твердое вещество [11].

Как показано в [10, 14], остывание металла, нагретого ультракороткими лазерными импульсами, определяется главным образом теплопроводностью. Вкладом испарения в процесс остывания, по оценкам, можно пренебречь. Следовательно, величина времени остывания может быть оценена как $\tau_c \sim \delta^2/4\chi$, где χ — коэффициент диффузии тепла. Эта оценка дает $\tau_c \approx 300 \text{ пс}$, что удовлетворительно согласуется с нашими экспериментальными результатами.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основные результаты работы состоят в следующем.

Разработан оптический метод исследования кинетики фазовых превращений на поверхности анизотропных сильнопоглощающих кристаллов (а также поликристаллов). Метод предоставляет возможность контроля наличия и исчезновения дальнего порядка в микрообластях на поверхности массивного образца, а также на дне микрократера, где подобные измерения с помощью малоуглового рентгеновского излучения или с помощью электронных пучков малоэффективны.

Результаты экспериментов по изучению кинетики фазовых превращений на поверхности цинка и графита, происходящих при воздействии пикосекундных лазерных импульсов, с помощью данного метода однозначно свидетельствуют о возможности получать информацию о кинетике плавления поверхностного слоя в пикосекундном временном масштабе.

Данная работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 96/52-18494, 96/52-18495 и 97-02-16044).

Литература

1. J. M. Liu, R. Yen, H. Kurz, and N. Bloembergen, *Appl. Phys. Lett.* **39**, 755 (1981).
2. D. van der Linde, K. Sokolowski-Tunten, and J. Bialkowski, *Appl. Surf. Sci.* **109/110**, 1 (1997).
3. D. H. Reitze, H. Ahn, and M. C. Downer, *Phys. Rev. B* **45**, 2677 (1992).
4. A. M. Malvezzi, N. Bloembergen, and C. Y. Huang, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 146 (1986).
5. X. Y. Wang and M. C. Downer, *Opt. Lett.* **17**, 1450 (1992).
6. Т. С. Корсунская, Ю. В. Кудрявцев, И. В. Лежненко, *Металлофизика* **6(5)**, 117 (1984).
7. S. Williamson, G. Mourou, and J. Li, *Phys. Rev. Lett.* **52**, 2364 (1984).
8. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982), с. 457.
9. С. И. Анисимов, Б. Л. Копелиович, Т. Л. Перельман, *ЖЭТФ* **66**, 776 (1974).
10. S. I. Anisimov and B. Rethfeld, *Proc. SPIE* **3093**, 192 (1997).
11. F. P. Bundy, *J. Chem. Phys.* **38**, 618 (1963).
12. В. И. Моторин, С. Л. Мушер, *ЖТФ* **52**, 1200 (1982).
13. V. I. Motorin and S. L. Musher, *J. Chem. Phys.* **81**, 465 (1984).
14. B. Rethfeld and S. Anisimov, *JETP Lett.* **62**, 872 (1995).