

基于飞秒瞬态反射/透射技术的纳米 Au 半透膜热效应研究

吴文智 高来勋 孔德贵 高扬 冉玲苓 柴志军

Thermal effect of translucent gold nanofilm based on transient reflection/transmission technique

Wu Wen-Zhi Gao Lai-Xu Kong De-Gui Gao Yang Ran Ling-Ling Chai Zhi-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 046801 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.046801

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.046801>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I4>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

700° 退火下铝调制镍硅锗薄膜的外延生长机理

Mechanism of $\text{NiSi}_{0.7}\text{Ge}_{0.3}$ epitaxial growth by Al interlayer mediation at 700 °

物理学报.2016, 65(3): 036801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.036801>

ZnSb 掺杂的 $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ 薄膜的相变性能研究

Phase change properties of ZnSb-doped $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ films

物理学报.2015, 64(17): 176802 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.176802>

包埋 Pt 纳米粒子对金属-半导体-金属结构 ZnO 紫外光电探测器性能的影响

Effect of Pt NPs in the film on the performances of ZnO-based metal-semiconductor-metal structured ultraviolet photodetector

物理学报.2015, 64(6): 067802 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.067802>

共溅射 Al-Zr 合金薄膜的非晶化及其力学性能

Amorphizing and mechanical properties of co-sputtered Al-Zr alloy films

物理学报.2014, 63(13): 136801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.136801>

磁控溅射 (Ti N)/Al 纳米复合薄膜的微结构和力学性能

Microstructures and mechanical properties of (Ti N)/Al nanocomposite films by magnetron sputtering

物理学报.2013, 62(3): 036801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.036801>

基于飞秒瞬态反射/透射技术的纳米 Au 半透膜热效应研究*

吴文智[†] 高来勳 孔德贵 高扬 冉玲苓 柴志军

(黑龙江大学电子工程学院, 哈尔滨 150080)

(2015年8月26日收到; 2015年12月6日收到修改稿)

以飞秒激光放大器作为光源联合使用瞬态反射/透射实验技术研究了纳米 Au 半透明纳米薄膜中非平衡载能粒子的热传导过程. 在相同实验条件下, 发现该薄膜的瞬态透射和反射信号明显不同并且延迟时间在 5.0—7.5 ps 时瞬态透射信号的符号发生改变. 对纳米薄膜的透射和反射信号进行了对比分析, 分别使用双温模型和 Crude 近似进行数据模拟并拟合, 分析认为沿膜厚方向的温度梯度变化和界面热阻效应引起介电函数的变化不同, 从而引起了瞬态透射信号和反射信号的不同. 对于半透明金属纳米薄膜需要同时考虑其瞬态透射和反射影响才能得到准确的瞬态吸收结果. 随着抽运脉冲能量的增加, 可以看到上升时间约为 1.0 ps, 电子-晶格弛豫时间增加.

关键词: 金纳米薄膜, 热传导, 非平衡载能粒子, 双温模型

PACS: 68.35.bd, 78.66.-w, 42.87.-d

DOI: 10.7498/aps.65.046801

1 引言

随着超快激光脉冲技术不断成熟和发展, 近年来它已经成为研究各种纳米和块体材料光学性质的重要手段. 基于飞秒脉冲的瞬时功率极高的特点, 其多用于材料烧蚀、新物质合成和微结构加工诱导等方面的研究工作. 而基于飞秒脉冲的持续时间极短的特点, 主要使用抽运-探测、相干反斯托克斯拉曼光谱、荧光上转换等时间分辨技术研究材料在激光作用下载能粒子的衰减过程. 在抽运-探测技术的发展中, 针对反射率较高的薄膜材料的测量采用的是飞秒瞬态热反射 (femtosecond transient thermoreflectance, FTTR) 技术, 测量高反射率材料的非平衡载能粒子弛豫过程, 因其在时间分辨上的优势和非接触式测量使得该项技术成为微尺度热输运机理研究领域主要的实验手段.

FTTR 技术作为一种快速、无损伤测量手段, 被应用于热扩散率、热导率以及界面热导等材料热物性的研究^[1].

金属薄膜作为太阳能电池、纳米阵列微结构、电容器和微机械传感器等方面的组成部分, 深入理解金属薄膜材料的热效应, 对于改善器件散热性能和提高系统指标有着重要的意义. 为满足实际应用的需要, 使用相应的制膜技术以玻璃或者单晶 Si 等材料作为基底, 金属薄膜膜厚可以控制在几纳米到几微米的范围内. 作为表面等离子共振的产生载体, 60 nm 左右的金纳米薄膜多应用于生物材料介电常数测量方面. 目前关于金属纳米薄膜与超快脉冲作用的理论模型建立^[2,3]、理论模拟^[4-6]、超快弛豫过程测量^[7,8] 的研究报道很多. 2012 年, Guo 等^[9] 针对不同厚度的金/单晶 Si 构成的金属-半导体结构讨论得出金薄膜的电子和单晶

* 国家自然科学基金 (批准号: 61204007)、黑龙江省新世纪优秀人才支持计划 (批准号: 1254-NCET-018)、黑龙江省青年学术骨干支持计划 (批准号: 1252G047)、黑龙江省博士后启动基金 (批准号: LBH-Q14139) 和黑龙江大学杰出青年基金 (批准号: JCL201205, QL201211) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: wuwenzhi@hlju.edu.cn

Si 的声子在界面处相互作用导致接触热阻很小, 这显示金膜的电子和单晶 Si 的声子之间存在强的耦合作用. Wang 等^[10]在玻璃衬底上金薄膜的矩形亚波长孔阵列上, 使用飞秒超快光谱方法观察得到增强二次谐波信号, 通过分析进一步得出慢光效应不是二次谐波发生几何形状共振的主要物理根源. Venkatakrisnan 等^[11]使用飞秒激光脉冲对 1000 nm 的金膜进行微加工, 实现深度为 300 nm 表面刻蚀, 通过控制脉冲能量能够获得精确的诱导微结构. 王海东等^[12]针对金属材料的热波现象利用包含电子弛豫时间影响的双曲两步模型进行理论分析, 通过飞秒激光热反射实验系统对金属薄膜材料进行测量并计算出热波传播速度. 朱丽丹等^[13]使用抽运-探测热反射法研究了不同金属纳米薄膜的非平衡传热过程, 使用抛物两步模型进行拟合, 量化了电子温度和晶格温度对反射率的影响. 针对透明基底的金纳米薄膜同时开展瞬态反射和透射方面的实验, 可以比较瞬态透射和反射的实验结果, 讨论基底和薄膜厚度等对金属薄膜热传导的影响.

我们基于搭建的瞬态反射/透射实验装置, 测量了以 BK7 玻璃为基底的膜厚为 60 nm 的 Au 纳米薄膜非平衡载能粒子的衰减过程, 并与厚度为 1000 nm 的金纳米薄膜进行了对比. 分析了不同采集信号方式对测试结果的影响, 并使用双温模型和 Crude 近似对数据进行了分析. 该研究有助于理解半透明纳米薄膜的界面效应和尺寸效应对其光学和热学性质的影响.

2 理论模型与实验装置

2.1 理论模型

双温模型(又称为抛物两步模型)由 Anisimov 等^[14]在 1974 年提出, 模型描述的是金属电子和晶格系统被激发和弛豫的物理过程. 当超短脉冲作用金属表面时, 因为电子系统和晶格系统的热响应差别很大, 金属的热效应不能由经典的傅里叶热传导方程描述. 激光能量首先被金属中的自由电子吸收, 在极短的时间里大量电子瞬间达到温度极高的非平衡状态, 非平衡电子与金属中的原子实通过相互碰撞弛豫达到热平衡. 在随后的几个皮秒时间范围内, 电子系统将电子的能量通过电子-晶格耦合的方式传递给局域的晶格, 这个过程完成的

标志是电子系统和晶格系统达到同一温度. 1987 年, Elsayed-Ali 等^[15]利用脉宽为 200 fs 的脉冲激光对金属 Cu 膜中透射率的热调制信号进行了测试, 观察到 Cu 薄膜中电子与晶格之间的最大温差高达 2200 K. 这种非平衡现象持续时间为 1—4 ps, 并且持续时间随抽运光强的增大而变长. 针对电子温度大于 4000 K 的情况, 研究发现此时必须考虑电子-电子碰撞效应, 在考虑电子-晶格碰撞和电子-电子碰撞的基础上改进双温模型, 研究金属表面的电子随时间的演化规律以及金属内的电子和晶格随时间和烧蚀深度的变化规律^[16].

基于双温模型, 金属的电子和晶格温度的耦合方程可以表示为

$$C_e \frac{\partial}{\partial t} T_e(x, t) = \frac{\partial}{\partial x} \left(\kappa_e \frac{\partial}{\partial x} T_e(x, t) \right) - g(T_1(x, t) - T_e(x, t)) + Q(x, t), \quad (1a)$$

$$C_1 \frac{\partial}{\partial t} T_1(x, t) = \frac{\partial}{\partial x} \left(\kappa_1 \frac{\partial}{\partial x} T_1(x, t) \right) + g(T_1(x, t) - T_e(x, t)), \quad (1b)$$

式中, T_e 是电子温度; T_1 是晶格温度; 电子定容比热容 C_e 与电子温度成正比; 电子热导率 κ_e 可以表示为 $K_{eq} T_e / T_1$, 其中 K_{eq} 是室温下的电子热导率; C_1 是晶格的定容比热容; κ_1 为晶格的热导率, 与电子热导率相比 κ_1 数值极小, 所以 (1b) 式右侧第一项的贡献可以忽略不计^[9]; $Q(x, t)$ 描述的是金膜吸收的能量, 是一个关于膜厚 d 和时间 t 的高斯型函数, 可以表示为

$$Q(x, t) = \frac{0.94(I_0 - RE - TR)F}{t_p d} \times \exp \left[-2.77 \left(\frac{t - 2t_p}{t_p} \right)^2 \right], \quad (2)$$

其中, F 和 t_p 分别是入射激光脉冲的能流密度和脉冲宽度, RE 和 TR 是薄膜材料的稳态反射率和透过率, d 是金纳米薄膜的厚度. 当电子温度超过 10000 K 时, 基于双温模型的方程 (1) 求解的温度依赖关系是不准确的.

2.2 金膜的制备

厚度为 130 μm 的 BK7 玻璃基片先后用丙酮和去离子水进行清洗, 并在氮气中干燥, 金膜的制备使用真空电子束蒸镀技术, 用成都真空机械厂生产的真空蒸发镀膜机 (ZZS-800). 纯度为 99.999%

的金片作为靶材, 蒸发速率和薄膜厚度通过IC/5薄膜沉积控制器 (INFICON) 进行控制^[17]. 测量厚度为60 nm的金膜的吸收光谱, 其吸收峰的位置约为509 nm处, 这是因为5d-6s电子之间存在的共振吸收. 使用原子力显微镜 (Nanosurf-Easyscan) 观察薄膜表面形貌并通过划痕深度测量的图形如图1所示.

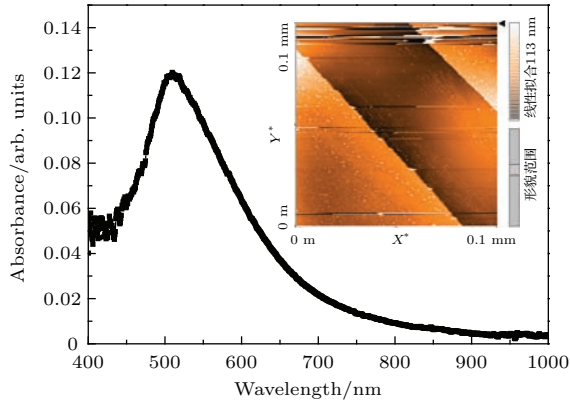


图1 (网刊彩色) 半透明金纳米薄膜的吸收光谱, 插图为原子力显微镜下薄膜表面形貌和厚度
Fig. 1. (color online) Absorption spectrum of translucent gold film. Inset is the surface morphology of gold film surface.

2.3 实验装置

以钛宝石飞秒激光放大器 (相干, Legend) 作为激发光源, 输出的激光波长为800 nm, 脉宽为120 fs, 重复频率为1 kHz, 具体的瞬态反射/透射实验装置如图2(a)所示. 飞秒脉冲激光被分束片分为两束, 一束能量较强的飞秒脉冲经过偏硼酸钡 (BaB₂O₄) 低温相晶体 (简称为BBO晶体) 倍频后得到400 nm激光作为抽运光, 经过斩波器赋予抽运光一个频率, 实验中斩波器的频率为85 Hz, 经过一个15 cm透镜聚焦作用于样品, 另外一束能量较弱的飞秒脉冲作为探测光, 经过透镜聚焦用于探测抽运光引起的反射率 (透过率) 的变化. 探测光经过半透膜样品后, 反射一部分并且透射一部分, 分别与各自的参考光做差, 消除激光系统本身的不稳定. 使用预放大器进行限频放大, 电信号进入锁相放大器进行处理, 得到不同时刻探测光强的变化. 探测光相对抽运光脉冲到达样品的时刻有一个精确的延迟时间, 测量过程中, 每一次测量确定波长和时间点上的反射率和透过率, 可以得到脉冲作用后一段时间内特定波长下反射率的变化曲线. 使用两个平衡硅探测器 (Newport, Model2307) 采集瞬

态透射和反射信号. 采集到的信号可以经过加法器完成信号的相加, 可以得到半透明纳米薄膜的实际瞬态吸收曲线. 激光脉冲的能量使用能量计 (相干, J-10SI-HE) 进行测量. 图2(b)是抽运光和探测光与半透明金属薄膜作用的示意图, 被调制的抽运光作用在薄膜表面造成一系列的温度响应, 抽运激光脉冲的温度变化会引起反射率和透过率变化.

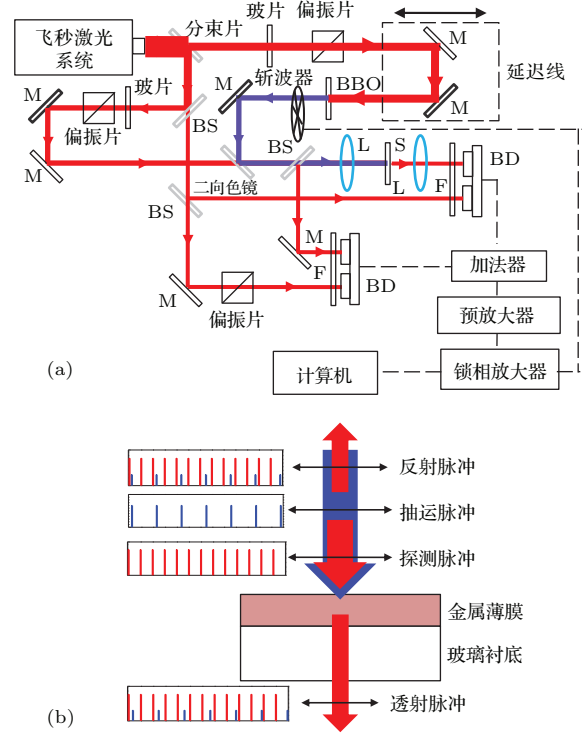


图2 (网刊彩色) (a) 飞秒瞬态反射/透射实验装置图, 其中M为介质膜反射镜, BBO为倍频晶体, BS为分束片, BD为平衡硅探测器, F为滤光片, L为透镜, S为薄膜样品; (b) 抽运光和探测光与半透明金属纳米薄膜作用的示意图
Fig. 2. (color online) (a) Experimental setup of femtosecond transient reflection/transmission technique, where M is the mirror with dielectric film, BBO is the single crystal for second-harmonic generation, BS is the beam splitter, BD is the balanced detector, F is the light filter, L is the lens, S is the film for measurement; (b) the diagram for the interaction between laser and nanofilm.

通常情况下沿着金属薄膜膜厚方向有温度场分布, 温度场的存在对半透明薄膜的瞬态透过率和反射率影响是不同的, 从而影响瞬态透过率和瞬态反射率的结果.

3 理论模拟与实验结果分析

使用双温模型对60和1000 nm金膜分别进行电子温度和晶格温度的模拟, 该模型中需要用到的金膜的物性参数如表1所列.

表1 用于双温模型的金膜基本物性参数数据
Table 1. Basic parameters of gold film using two-temperature model.

金膜厚度/nm	初始温度/K	厚度/nm	反射率/透射率	穿透深度 ^[18] /nm	电子定容比热容 $C_e/J\cdot m^{-3}\cdot K^{-1}$	电子热导率 $K_{eq}/W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$	晶格定容比热容 $C_l/J\cdot m^{-3}\cdot K^{-1}$	电子-晶格耦合系数 $g/W\cdot m^{-3}\cdot K^{-1}$
60	300	60	20	16	71	317	2.5×10^6	1.5×10^{16}
1000	300	1000	∞	16	71	317	2.5×10^6	2.2×10^{16}

使用Crank-Nicolson方法对双温模型方程组进行数值模拟^[2,19],得到60 nm金膜的电子温度和晶格温度随时间和抽运能量的变化如图3所示.可以看出,随着抽运能量的增加,电子温度和晶格温度都大幅提高,在一定范围内温升和抽运能量之间存在着正比关系^[20,21].

图4(a)和图4(b)分别是60和1000 nm金纳米薄膜在不同能量脉冲抽运下的瞬态反射率曲线,抽运激光波长为400 nm,抽运能量分别为50, 70, 90, 110 nJ/pulse. 其中黑实线是经过双温模型模拟得

到的结果,模拟所用到的材料参数如表1所列.可以看出薄膜厚度对金薄膜的瞬态热反射过程影响很大,纳米薄膜的厚度和其穿透深度(16 nm)是可以比较的,所以电子和晶格之间的热传导会受到基底材料和界面效应的影响.薄膜越厚,纳米薄膜的电子-晶格耦合系数明显变大^[22].针对厚度为60 nm的金薄膜,我们选用的电子-晶格耦合系数为 $1.5 \times 10^{16} W/(m^3\cdot K)$ ^[23];而针对1000 nm金薄膜,我们选用体材料金的电子-晶格耦合系数为 $2.2 \times 10^{16} W/(m^3\cdot K)$ ^[24].

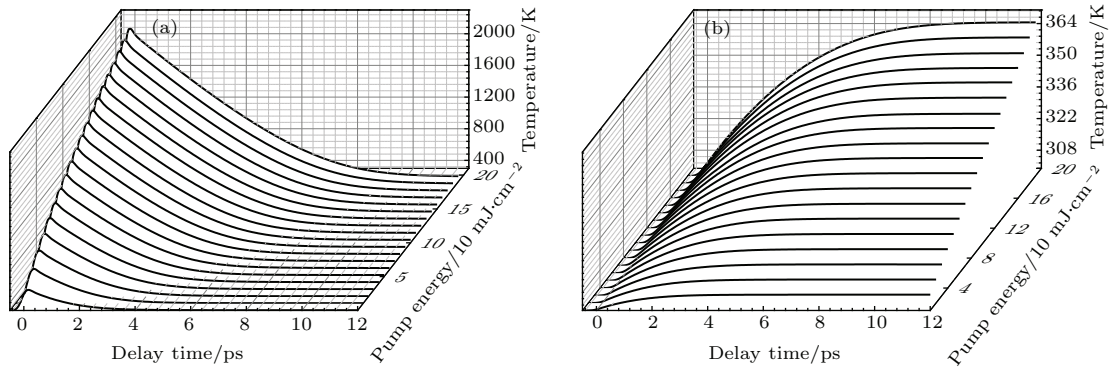


图3 60 nm厚的金膜表面的电子温度和晶格温度随时间和抽运能量的变化,其中抽运能量从10到200 mJ/cm²
Fig. 3. The time-dependence temperature of the electron and lattice of the gold surface with the thickness of 60 nm for different laser fluences from 10 to 200 mJ/cm².

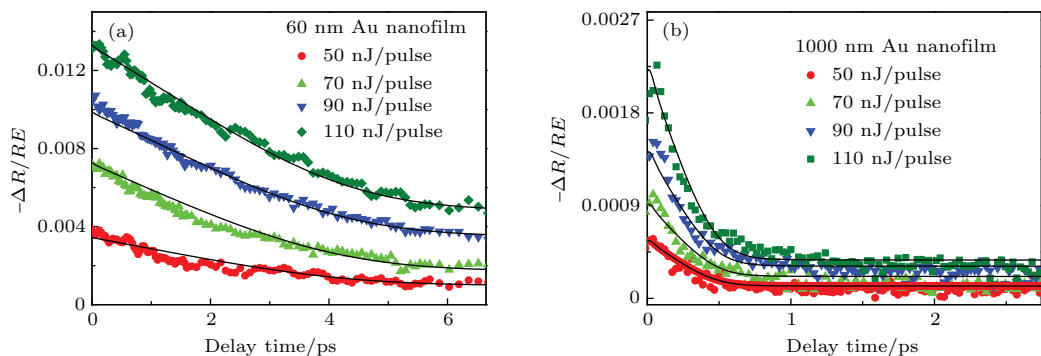


图4 (网刊彩色) (a)不同抽运能量下60 nm金膜的瞬态反射实验结果; (b)不同抽运能量下1000 nm金膜的瞬态反射实验结果;黑线为经过双温模型模拟得到的结果
Fig. 4. (color online) (a) Transient reflectivity of gold nanofilm with the thickness of 60 nm at different laser fluences; (b) transient reflectivity of gold nanofilm with the thickness of 1000 nm at different laser fluences. Black line is the fitting results using two-temperature model.

通过拟合,可以看出晶格温度在非平衡时间内,对于实验得到的金膜表面的温度影响很小,因此可以把热反射模型简化到只受电子温度影响的模型.在超短激光脉冲加热金膜后最初的几百飞秒内,所呈现的是电子能量状态的一种近似表征,是一个非传热的过程,不适合用双温模型来拟合实验结果.文中还使用了Crude近似模型模拟得到的实验结果.

对于大多数半导体,高能激光脉冲激发导致局域介电函数发生改变或能隙宽度因温度发生变化,因而我们看到了瞬态反射率的符号发生变化^[25].同样对半透明金膜的瞬态信号,表面温度的变化导致其复介电函数发生改变,温度越高,费米拖尾越明显^[26],从而改变了薄膜的瞬态反射率和透过率^[27,28].在延迟时间约7.5 ps时,其瞬态透过率的符号发生变化.因为飞秒激光脉冲的重复率为1000 Hz,所以不可能是由于激光脉冲间的热积累造成的.

由于瞬态透过光强变化 ΔT 、反射光强变化 ΔR 和吸收光强变化 ΔA 之和应为零,它们都是时间变量 t 的函数,在任意时刻,其吸收光强变化可以表示为

$$\Delta A = -(\Delta T + \Delta R). \quad (3)$$

实验中由于测量反射信号需要使用到分束片和调节探测光光强 I_0 ,并且需要考虑纳米薄膜的稳态透过光强 TR 和反射光强 RE ,实测60 nm金膜在800 nm波长处的吸收光强、透射光强和反射光强之比为1:1:20,可以通过瞬态反射率和瞬态透过率计算得到薄膜的瞬态吸收率为

$$\frac{\Delta A}{A} = -\left(\frac{\Delta T + \Delta R}{I_0 - TR - RE}\right), \quad (4)$$

其中激光光强 $I_0 = A + TR + RE$, A 是样品的稳态吸收光强.通过Crude近似对数据进行拟合,可以把数据表示为一快速上升成分和一个慢的弛豫成分,具体的拟合表达式为^[20,29,30]

$$\begin{aligned} & -\frac{\Delta R(t)}{RE} \left(\text{or} -\frac{\Delta T(t)}{TR}\right) \\ & = \int_0^t \left\{ A[1 - e^{-(t-t')/\tau_r}] e^{-(t-t')/\tau_{ep}} \right. \\ & \quad \left. + B[1 - e^{-(t-t')/\tau_{ep}}] \right\} e^{-(t'/\tau)^2} dt', \quad (5) \end{aligned}$$

这里 τ_r 反映的是亚皮秒量级的上升成分,这一成分和载能粒子的非热初始分布有关; τ_{ep} 反映的是电子-晶格作用的弛豫时间,与热平衡状态相关; τ 是

仪器响应函数,数值大约为300 fs.从拟合数据来看,延迟时间为零的时刻对应的上升沿部分和之后的弛豫曲线拟合得很好.随着抽运脉冲能量增加,瞬态透射数据与瞬态反射数据的上升时间 τ_r 是可以比较的.上升时间随着抽运脉冲能量的增加变化不大,而电子-晶格弛豫时间 τ_{ep} 随着抽运脉冲能量的增加而变长.对薄膜的表面形貌分析发现,形成的晶粒尺寸和体材料中电子的平均自由程接近甚至更小,此时表面和晶界对薄膜表面的热散射不可忽略^[20].

在相同的参考信号强度下,可以看到60 nm金纳米薄膜瞬态透射信号的强度是反射信号强度的3倍,具体结果如图5(a)和图5(b)所示,并且各自信号随延迟时间的变化不同,瞬态透射信号在5.0 ps之后出现符号变化.由于抽运脉冲直接加热金属薄膜表面,导致沿膜厚方向存在明显的温度差.经过抽运激光脉冲作用后,金膜温度升高.靠近空气的金膜表面温度高,而靠近玻璃基底的金膜表面电子温度和晶格温度低,如图5(c)和图5(d)所示.探测光与金膜作用时,反射部分接触到的金膜温度高,绝大部分探测光被反射.而经过薄膜和基底玻璃的透射光与温度较低的金膜作用,随着延迟时间的增加,瞬态透过率降低,而沿探测光入射方向金膜的温度也降低,进一步导致了瞬态透过率的降低,玻璃基底热阻的影响也会减小金膜背面的温度^[31],从而出现了瞬态透过率符号发生变化的情况.所以在针对金属纳米半透明材料进行超快过程测试时,进行瞬态透射或反射的测量,都可能带来实验偏差,应同时测量其瞬态透射和反射信号.

相同实验条件下,考虑到稳态透射和反射信号的比例关系,不同抽运能量下金膜的瞬态吸收随延迟时间的变化如图6(a)所示.不同抽运能量下金膜的瞬态反射和透射信号归一化后做差的曲线如图6(b)所示,实线为拟合后得到的结果.

金纳米薄膜的上升时间和电子-晶格弛豫时间随着抽运脉冲能量的变化如图7所示.可以看出抽运脉冲能量密度越大,电子-晶格弛豫时间越长.随着抽运脉冲能量的增加,可以看到上升时间约为1.0 ps.当抽运脉冲能量由50 nJ增加到110 nJ时,电子-晶格弛豫时间从5.0 ps变化到10.0 ps.该结论与飞秒脉冲激发金膜中激光能量密度对电子-晶格弛豫时间的影响规律一致^[32].抽运脉冲能量增加可以导致电子激发增强和电子温度增加,电子和晶格耦合作用加强,因此电子-晶格弛豫时间也随

着激光能量密度的增加而变大. 考虑金膜和玻璃界面处温度对膜厚方向求导的连续性, 在进行金膜的理论模拟时, 引入玻璃衬底对电子温度和晶格温度的影响将有利于瞬态透射和反射实验结果的解释.

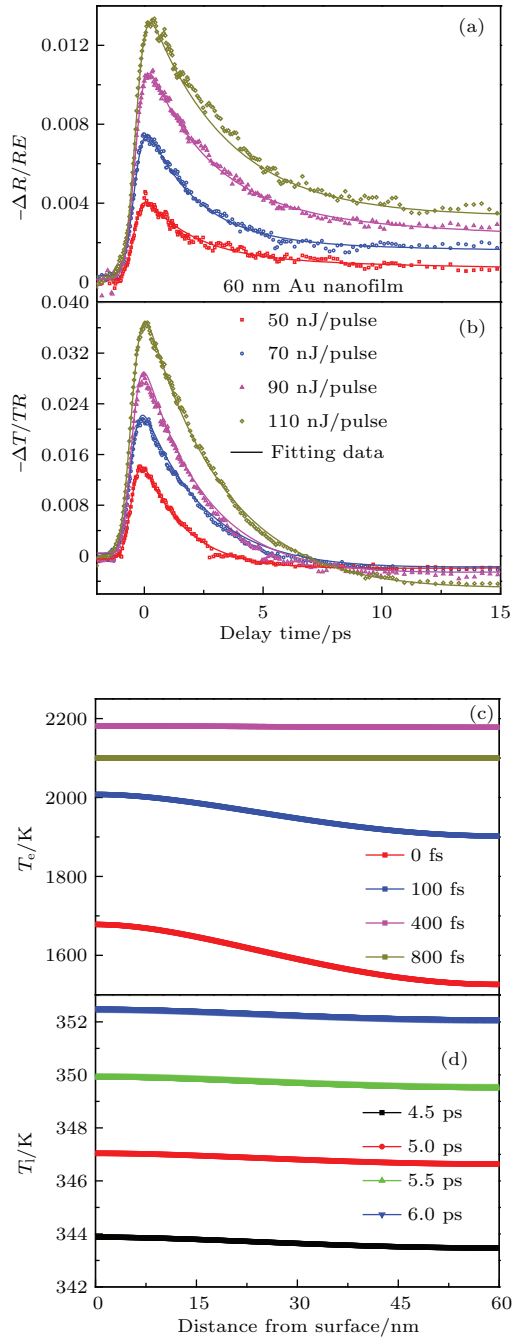


图5 (网刊彩色) 使用瞬态反射和透射装置测量金膜的反射率和透射率的变化 (a) 不同抽运能量下的瞬态反射率的变化; (b) 相同实验条件下不同抽运能量下的瞬态透射率的变化; (c), (d) 不同延迟时间下, 200 mJ/cm² 能量抽运脉冲作用下的金膜沿膜厚方向的电子温度和晶格温度分布
Fig. 5. (color online) Transient (a) reflectivity and (b) transmission data and fitting for gold nanofilm; the temperature distributions of (c) electron and (d) lattice at different time delay along the thickness of gold nanofilm at the laser fluence of 200 mJ/cm².

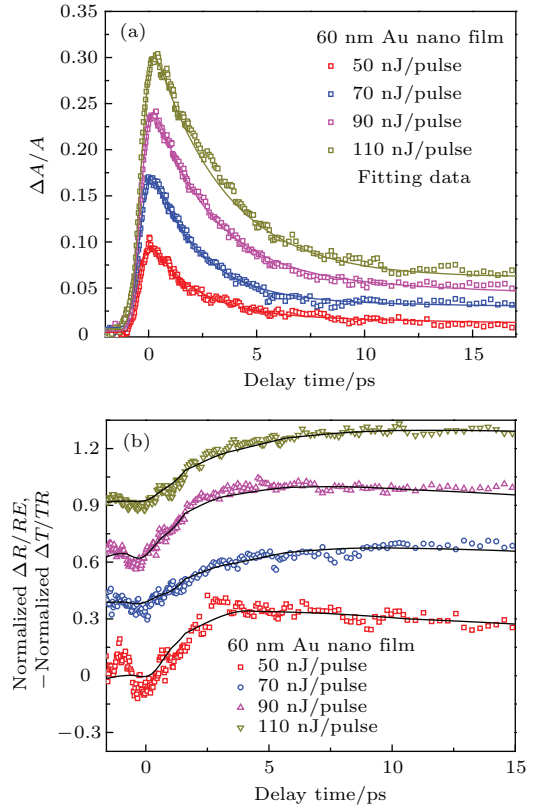


图6 (网刊彩色) (a) 将瞬态透射率和反射率相加得到不同抽运能量下 60 nm 金膜的实际瞬态吸收率; (b) 将瞬态透射率和反射率归一化后, 相减得到的不同抽运能量下 60 nm 金膜实际瞬态吸收率
Fig. 6. (color online) The (a) combination and (b) subtraction between transient reflectivity and transmissivity for gold nanofilm under the same experimental conditions.

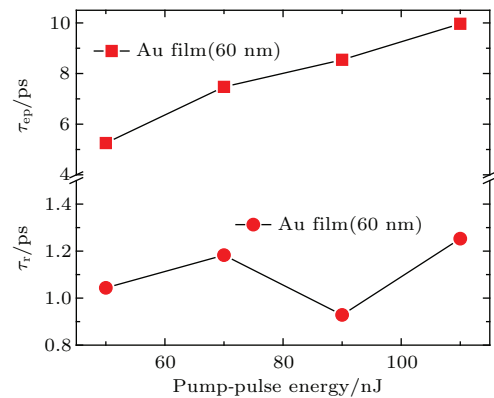


图7 (网刊彩色) 60 nm 金膜的上升时间和弛豫时间随着抽运能量的变化
Fig. 7. (color online) The rise time and electron-lattice relaxation time under various pump laser excitation based on the recombination between transient reflectivity and transmissivity for gold nanofilm.

4 结 论

金膜已经在表面等离子体共振、集成电路的元

件互联和吸波多层膜等器件和设备中得到了应用, 研究金纳米薄膜的载能粒子弛豫过程, 有利于了解薄膜器件的传热性质. 文中使用真空电子束蒸镀技术制备了 60 nm 金纳米薄膜, 使用飞秒瞬态反射/透射技术测量得到瞬态反射和透射结果, 研究了金纳米薄膜非平衡载能粒子的弛豫过程. 使用双温模型和 Crude 近似对实验结果进行了拟合, 指出瞬态反射和透射信号的明显不同主要是因为基底材料和沿膜厚方向的温度梯度场引起的, 使用加法器可以实现瞬态透射和反射信号的加和. 研究半透明金属纳米薄膜讨论其与超快激光脉冲相互作用时, 需要同时考虑透射和反射部分, 这样才能得到关于该薄膜材料的吸收部分的准确信息.

参考文献

- [1] Zhang C W, Bi K D, Wang J L, Ni Z H, Chen Y F 2012 *Sci. China Tech. Sci.* **55** 1044 (in Chinese) [张春伟, 毕可东, 王建立, 倪中华, 陈云飞 2012 中国科学: 技术科学 **55** 1044]
- [2] Smith A N, Hostetler J L, Norris P M 1999 *Numerical Heat Transfer Part A* **35** 859
- [3] Nielsen J B, Savolainen J M, Christensen M S, Balling P 2011 *Appl. Phys. A* **103** 447
- [4] Du G Q, Yang Q, Chen F, Ou Y, Wu Y M, Hou X 2015 *Int. J. Thermal Sci.* **90** 197
- [5] Li Q, Lao H Y, Lin J, Chen Y P, Chen X F 2011 *Appl. Phys. A* **105** 125
- [6] Du G Q, Yang Q, Chen F, Ou Y, Wu Y M, Lu Y, Bian H, Hou X 2014 *Chem. Phys. Lett.* **597** 153
- [7] Chen J, Chen W K, Tang J, Rentzepis P M 2011 *Proc. Nat. Acad. Sci. USA* **108** 18887
- [8] Rotenberg N, Bristow A D, Pfeiffer M, Betz M, van Driel H M 2007 *Phys. Rev. B* **75** 155426
- [9] Guo L, Hodson S L, Fisher T S, Xu X F 2012 *J. Heat Transfer* **134** 042402
- [10] Wang B L, Wang R, Liu R J, Lu X H, Zhao J M, Li Z Y 2013 *Sci. Rep.* **3** 2358
- [11] Venkatakrishnan K, Tan B, Ngoi B K A 2002 *Opt. Laser Technol.* **34** 199
- [12] Wang H D, Ma W G, Zhang X, Wang W 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 3856 (in Chinese) [王海东, 马维刚, 张兴, 王玮 2010 物理学报 **59** 3856]
- [13] Zhu L D, Sun F Y, Zhu J, Tang D W 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 130512 (in Chinese) [朱丽丹, 孙方远, 祝捷, 唐大伟 2012 物理学报 **61** 130512]
- [14] Anisimov S, Kapeliovich B, Perelman T 1974 *Soviet Phys. JETP* **39** 375
- [15] Elsayed-Ali H E, Norris T B, Pessot M A, Mourou G A 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 1212
- [16] Fang R R, Wei H, Li Z H, Zhang D M 2012 *Solid State Commun.* **152** 108
- [17] Li S Q, Ye H A, Liu C Y, Dou Y F, Huang Y 2013 *Chin. Phys. B* **22** 077302
- [18] Hohlfeld J, Wellershoff S S, Gudde J, Conrad U, Jahnke V, Matthias E 2000 *Chem. Phys.* **251** 237
- [19] Hopkins P E, Kassebaum J L, Norris P M 2009 *J. Appl. Phys.* **105** 023710
- [20] Jesus G M, Michael P H, Stephen R M 2008 *Surf. Sci.* **602** 3125
- [21] Bonn M, Denzler D N, Funk S, Wolf M, Wellershoff S S, Hohlfeld J 2000 *Phys. Rev. B* **61** 1101
- [22] Hostetler J L, Smith A N, Czajkowsky D M, Norris P M 1999 *Appl. Opt.* **38** 3614
- [23] Guo L, Xu X F 2014 *J. Heat Transfer* **136** 122401
- [24] Carpena E 2006 *Phys. Rev. B* **74** 024301
- [25] Lioudakis E, Othonos A, Dimakis E, Iliopoulos E, Georgakilas A 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 121128
- [26] Schoenlein R W, Lin W Z, Fujimoto J G, Eesley G L 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 1680
- [27] Garduno-Mejia J, Higlett M P, Meech S R 2007 *Chem. Phys.* **341** 276
- [28] Conforti M, Valle G D 2012 *Phys. Rev. B* **85** 245423
- [29] Sun C K, Vallee F, Acioli L H, Ippen E P, Fujimoto J G 1994 *Phys. Rev. B* **50** 15337
- [30] Sun C K, Vallee F, Acioli L, Ippen E P, Fujimoto J G 1993 *Phys. Rev. B* **48** 12365
- [31] Hopkins P E, Norris P M 2007 *Appl. Surf. Sci.* **253** 6289
- [32] Yang Q, Du G Q, Chen F, Wu Y M, Si J H, Hou X 2014 *Chin. J. Lasers* **41** 502005 (in Chinese) [杨青, 杜广庆, 陈烽, 吴艳敏, 司金海, 侯洵 2014 中国激光 **41** 502005]

Thermal effect of translucent gold nanofilm based on transient reflection/transmission technique*

Wu Wen-Zhi[†] Gao Lai-Xu Kong De-Gui Gao Yang Ran Ling-Ling Chai Zhi-Jun

(School of Electronic Engineering, Heilongjiang University, Harbin 150080, China)

(Received 26 August 2015; revised manuscript received 6 December 2015)

Abstract

In this work, the relaxation dynamics of optically excited electrons and lattice in translucent gold nanofilms is measured with femtosecond transient reflection and transmission technique. In order to investigate the mechanisms of heat transfer in metal nanofilm theoretically, the two-temperature model and the Crude-model approximation are used to estimate the profile of decays and the temperature of electrons and lattice. Ultrafast relaxation dynamics of gold nanofilm 60 nm in thickness is different obviously in transient reflection and transmission measurements. Electron-lattice coupling effect in the transmission method is stronger and more sensitive than that in the reflection method under the same experimental conditions. Gradient change of temperature along the direction of film thickness and interface thermal resistance due to the boundary scattering should be responsible for the difference between them. Experimental data suggest that both transient reflection and transient transmission of translucent films should be considered together in the investigation on the mechanism of heat transfer. With increasing energy of pump laser pulse, the rise time is about 1.0 ps, and the electron-lattice relaxation time becomes longer.

Keywords: gold nanofilm, heat transfer, nonequilibrium energetic particle, two-temperature model

PACS: 68.35.bd, 78.66.-w, 42.87.-d

DOI: 10.7498/aps.65.046801

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61204007), the New-Century Training Programme Foundation for the Talents by Heilongjiang Province, China (Grant No. 1254-NCET-018), the Foundation for University Key Teacher by Heilongjiang University, China (Grant No. 1252G047), the Heilongjiang Province Postdoctoral Science Foundation, China (Grant No. LBH-Q14139), and the Science Fund of Heilongjiang University for Young Scholars, China (Grant Nos. JCL201205, QL201211).

[†] Corresponding author. E-mail: wuwenzhi@hlju.edu.cn