

# АНОМАЛЬНОЕ ПРОПУСКАНИЕ СВЕТА ОПТИЧЕСКИ ТОЛСТЫМИ ПЛЕНКАМИ НИКЕЛЯ, ЯВЛЯЮЩИМИСЯ ОПТОАКУСТИЧЕСКИМИ ТРАНСДЬЮСЕРАМИ

*Ю. В. Петров*<sup>a,b</sup>, *С. А. Ромашевский*<sup>c</sup>, *А. В. Дышлок*<sup>d,e</sup>, *В. А. Хохлов*<sup>a</sup>,  
*Е. М. Еганова*<sup>f</sup>, *М. В. Поляков*<sup>f</sup>, *С. А. Евлашин*<sup>g</sup>, *С. И. Ашитков*<sup>c</sup>, *О. Б. Витрик*<sup>d</sup>,  
*Н. А. Иногамов*<sup>a,h,c\*</sup>

<sup>a</sup> *Институт теоретической физики им. Л.Д. Ландау РАН, 142432, Черноголовка, просп. Академика Семенова, 1А*

<sup>b</sup> *Московский физико-технический институт, 141701, Долгопрудный, Институтский пер., 9*

<sup>c</sup> *Объединенный институт высоких температур РАН, 125412, Москва, ул. Инжорская 13/2*

<sup>d</sup> *Институт автоматики и процессов управления Дальневосточного отделения РАН, 690041, Владивосток, ул. Радио, 5*

<sup>e</sup> *Владивостокский государственный университет (ВВГУ), 690014, Владивосток, ул. Гоголя, 41*

<sup>f</sup> *Институт нанотехнологий и микроэлектроники РАН, 119991, Москва, Ленинский просп., 32А*

<sup>g</sup> *Сколковский институт науки и технологий, 121205, Москва, Большой бульвар, 30, стр.1*

<sup>h</sup> *Всероссийский НИИ автоматики им. Н.Л. Духова Росатом, 127055, Москва, ул. Суцёвская, 22*

Поступила в редакцию ...

Технологии, связанные с ультратонкими пленками, имеют важное значение для микроэлектроники. В этой связи много внимания обращают на механические и оптические свойства пленок. В настоящей работе исследованы пленки никеля на подложке из стекла. Обнаружен неожиданный эффект прозрачности пленок для света с пропусканием 1-10% падающего излучения. При этом пленки, во-первых, имеют толщину достаточно большую по отношению к толщине скин-слоя 12-13 нм; поэтому такое пропускание названо "аномальным". И, во-вторых, сохраняют свои упругие механические характеристики, которые не отличаются от свойств абсолютно однородных и с фиксированной толщиной пленок. Соответственно наши пленки действуют стандартно в качестве акустических резонаторов и в качестве излучателей акустических волн в подложку (трансдюсеры). Аномальное пропускание света объясняется неоднородной структурой пленки. При этом пропускание света позволяет видеть через пленку Бриллюэновские интерференционные осцилляции, связанные с распространением акустических волн в подложке.

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Микроэлектроника, оптоакустика и нанофотоника - важные направления современной науки и техники. Во-многом они связаны с фемтосекундными (фс) лазерами и применением устройств на ультратонких пленках. Типичное устройство (трансдюсер) в оптоакустике состоит из тонкой пленки металла на поверхности диэлектрической подложки. Фс импульс генерирует акустическую волну в плен-

ке металла. Эта волна осциллирует внутри пленки и проходит в подложку в виде гиперзвука, т.е. звука гипервысокой частоты. Эти частоты находятся в диапазоне 10-100 ГГц и на несколько порядков превышают верхнюю границу частот ультразвука - обычно единицы МГц [1, 2].

В нанофотонике применяются перфорированные пленки с заданной структурой заранее созданных перфораций (решетки, периодически расставленные щели) [3-6]. Причем размеры перфораций (отверстий) и расстояний между ними существенно мень-

\* E-mail: nailinogamov@gmail.com

ше длины волны света [3–6]. Дифракционные явления [7, 8] и плазмоника [5, 6]. определяют количество и характеристики прошедшего света (экстраординарное пропускание).

В нашей работе, по-видимому впервые, рассматривается гибридный случай. С одной стороны наша пленка выступает, как стандартный трансдьюсер [1, 2], преобразующий лазерный импульс в гиперзвук [9,10]. С другой стороны пленка пропускает свет, благодаря пространственной неоднородности в виде шаровидных наночастиц и зазоров вокруг них.

Наблюдаемое нами пропускание происходит вследствие комбинации двух факторов. Это (А) усиление электромагнитного (ЭМ) поля на наночастицах посредством плазмонного дипольного резонанса и наличия “целевых” плазмонов в зазорах и (Б) туннелирование усиленного ЭМ поля через никель. В отличие от механизма с экстраординарным пропусканием, в нашем случае, во-первых, нет сквозных отверстий и, во-вторых, наши наночастицы располагаются случайно, т.е. не образуют периодической решетки.

Гиперзвук в подложке представляет собой периодически разнесенную в пространстве систему параллельных плоскостей уплотнений - это гребни гиперзвука. Плоскости параллельны плоскости пленки. Система распространяется в сторону удаления от пленки со скоростью звука. В моменты времени, когда между пленкой и гребнем укладывается целое число полуволин диагностического лазерного излучения, происходит интерференция. Это позволяет наблюдать Бриллюэновские интерференционные осцилляции.

Такие осцилляции видят и при диагностике с тыльной стороны пленки, и с фронтальной стороны, т.е. через металлическую пленку трансдьюсера. Фронтальной здесь мы называем границу пленка-воздух или вакуум. При этом тыльная сторона - это контактная граница (контакт) между пленкой и подложкой.

Фронтальные (т.е. через пленку) наблюдения Бриллюэновских осцилляции до сих пор выполнялись при толщине металлической пленки порядка толщины скин-слоя [11, 12], когда пленка полупрозрачна для света. В нашем случае в примере с пленкой никеля толщиной  $d_f = 73$  нм пропускание однородной пленки в одну сторону ничтожно:

$$\exp(-d_f/d_{sk}) = e^{-73/13} = 1/275.$$

Для диагностического излучения на длине волны 793 нм толщина скин-слоя равна  $d_{sk} = 12 - 13$  нм. Чтобы в диагностическом свете видеть осцилляции

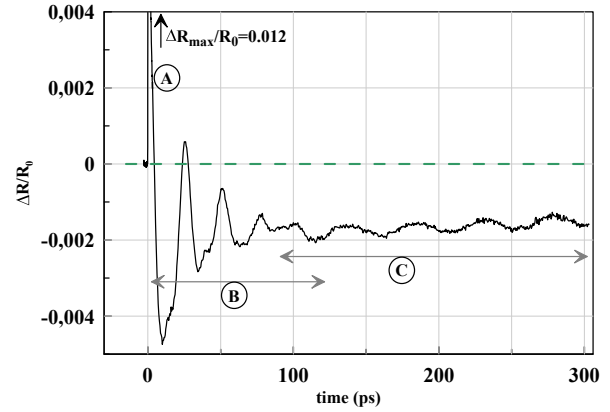


Рис. 1. Временная вариация дифференциального коэффициента отражения  $\Delta R(t)/R_0$  от фронтальной границы для диагностического импульса  $\lambda = 793$  нм. Время отсчитывается от максимума нагревающего импульса (схема pump-probe), освещающего мишень пленка/подложка с фронтальной стороны. Поглощенный флюенс  $F_{abs} = 10.9$  мДж/см<sup>2</sup>. Пленка никеля с  $d_f \approx 70$  нм, напыленная на стеклянную подложку толщиной 150 мкм. Имеются три характерные стадии: А - неравновесная стадия с сильно возбужденными электронами зоны проводимости. Продолжительность этой стадии  $\sim 1$  пс. В - стадия доминирования акустического эха в пленке никеля. С - интерференция Бриллюэновских рассеяний на звуковой волне, бегущей в стеклянной подложке.

с фронтальной стороны, пленку надо пройти два раза. Соответственно коэффициент ослабления составит очень малую (ненаблюдаемую в наших условиях) величину

$$\sim 10^{-5}. \quad (1)$$

Поразительно, но осцилляции обнаруживаются (!), см. рис. 1, где имеется характерная стадия С.

### 1.1. Краткое содержание и детали постановки

Методика измерений накачка-зондирование (pump-probe) представлена в главах 2.1, 3-5. Эксперимент опирается на определение зависимости от времени терморефлектанса. Находятся дифференциальный коэффициент отражения (рефлектанс), как функция времени  $\Delta R(t)/R_0$ , см. подраздел 2.1. Название терморефлектанс имеет исторические корни. Считается, что изменения  $\Delta R$  обусловлены нагревом лазерным импульсом "накачка". На самом деле имеются изменения вторичного (относительно нагрева) характера, связанные с прохождением акустических волн. Для измере-

ния функции  $\Delta R(t)/R_0$  применяется методика синхронного детектирования, см. подраздел 2.1.

Объектом анализа является пленка никеля, нанесенная на стеклянную подложку с помощью распыления магнетроном, см. главу 5. Импульсы накачки и зондирования генерируются фемтосекундной лазерной системой на кристалле титан-сапфира (Coherent, Legend). Схема установки и детали системы описаны в статье [13].

В главе 2 поясняется физика бриллюэновских осцилляций. В главе 3 приводятся данные по пропусканию света, полученные с помощью источника DH-2000 (Ocean Optics). В главе 4 описано каким образом в опытах определялась зависимость  $\Delta R(t)/R_0$ . Главы 5 и 6 посвящены исследованиям структуры напыленной пленки никеля. В главах 7 и 8 описана теория явлений.

## 2. БРИЛЛЮЭНОВСКИЕ ОСЦИЛЛЯЦИИ

### 2.1. Экспериментальные измерения

На рис. 1 показаны результаты нашего измерения терморелефлектанса в технике синхронного детектирования [14–16]. Терморелефлектансом называем относительное дифференциальное изменение коэффициента отражения диагностического лазерного импульса  $\Delta R(t)/R_0$ . Здесь  $\Delta R(t) = R(t) - R_0$ ,  $R_0$  - коэффициент отражения мишени до воздействия нагревающего импульса,  $R(t)$  - текущее значение коэффициента отражения. Время  $t$  - это время задержки прихода на фронтальную поверхность диагностического фс лазерного импульса относительно прихода на мишень максимума интенсивности фс нагревающего лазерного импульса. Измерения, показанные на рис. 1, выполнены с фронтальной стороны. И нагревающий, и диагностический лазерные импульсы действуют на мишень пленка-подложка с фронтальной стороны. Диагностический импульс падает на плоскость мишени по нормали к плоскости.

В никеле велик коэффициент обмена между электронной и фононной подсистемами. Соответственно, двухтемпературная  $T_e \gg T_i$  стадия А на рис. 1 очень короткая. На рисунке показано максимальное положительное значение 0.012 коэффициента  $\Delta R(t)/R_0$ , вышедшее за рамку рисунка. Значение 0.012 относится к двухтемпературной стадии А. Нас будут интересовать последующие стадии В и С, на которых никель находится в однотемпературном состоянии  $T_e = T_i$ .

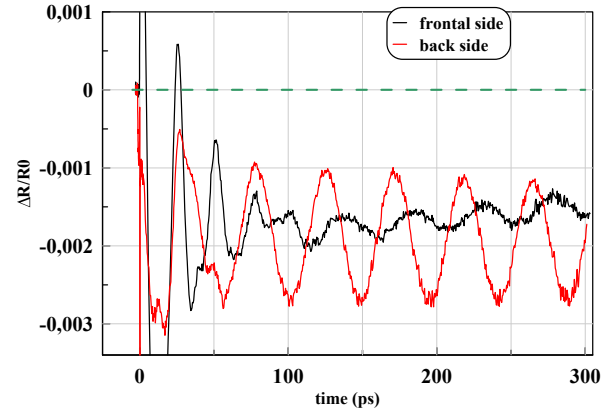


Рис. 2. Красная кривая: временная вариация коэффициента  $\Delta R(t)/R_0$  при облучении греющими и диагностическими импульсами с тыльной стороны. При этом поглощенный флюенс  $F_{abs} = 10.3$  мДж/см<sup>2</sup>. Образец такой же, как на рис. 1. Черная кривая перенесена с рис. 1. Она относится к облучению греющими и диагностическими импульсами с фронтальной стороны.

Штриховая горизонтальная прямая на рис. 1 отмечает исходный уровень коэффициента  $\Delta R(t)/R_0$  нашей мишени из пленки и подложки. Для толстого образца никеля при нормальном падении на длине волны 793 нм имеем  $R_0 = 0.74$ .

На рис. 2 красной кривой показаны результаты измерений, когда и греющий, и диагностический импульсы освещают мишень с тыльной стороны. Сравниваются случаи облучений с фронтальной и тыльной сторон. Бриллюэновские осцилляции проявляются раньше и имеют увеличенную полную амплитуду  $\Delta R(t)/R_0$  от 0.0017 до 0.0015 (от максимумам до минимумам) при облучении с тыльной стороны. Амплитуда этих осцилляций при освещении с фронтальной стороны равна в среднем 0.0003, т.е. в 5-6 раз меньше.

Периоды акустических осцилляций, связанных с Бриллюэновским рассеянием, равны

$$T_{Brillouin} = \lambda_{probe} / (2 n_{gl} c_{gl}). \quad (2)$$

Здесь  $\lambda_{probe} = 793$  нм - длина волны диагностического света в вакууме,  $n_{gl}, c_{gl}$  - показатель преломления и скорость звука в стеклянной подложке (gl - glass); на рис. 2 - это боросиликатное стекло.

Периоды (частоты) световых осцилляций одинаковы в вакууме и в стекле. Фазовая скорость света в стекле меньше. Соответственно уменьшается длина волны света в стекле  $\lambda_{gl} = \lambda / n_{gl}$ . Сложение отражений от (А) гребня мгновенного профиля показателя преломления в стекле и (Б) контакта никель-стекло

будет в фазе, когда между двумя этими отражателями А и Б укладывается целое число полуволн  $\lambda_{gl}/2$ . Говорится о полуволне, поскольку отрезок между гребнем и контактом свет проходит сначала вперед, а потом назад. Т.о. длина пути удваивается. Гребень акустической волны в стекле удаляется от контакта со скоростью звука  $c_{gl}$ . Отсюда следует выражение (2).

Измеренные по черному и красному графикам на рис. 2 периоды Бриллюэновских осцилляций одинаковы: при облучении с тыльной стороны  $T_{Brillouin} = 47 \pm 0.5$  пс, при облучении с фронтальной стороны  $T_{Brillouin} = 48 \pm 4$  пс. С фронтальной стороны зависимость  $\Delta R(t)/R_0$  является более шумной. Если принять значение показателя преломления для стеклянной подложки  $n_{gl} = 1.5$  и считать, что период  $T_{Brillouin} = 47.5$  пс, то, согласно (2), получим, что скорость звука в стекле равна  $c_{gl} = 5.55 \pm 0.05$  км/с. При этом объемный модуль стекла  $B_{gl}$ , найденный из соотношения  $c_{gl} = \sqrt{B_{gl}/\rho_{gl}}$ , равен 77 ГПа при  $\rho_{gl} = 2.5$  г/см<sup>3</sup>.

## 2.2. Гидродинамическое моделирование

Акустические поля представлены на рис. 3. Как сказано, пленка никеля резонирует и в моменты резонанса отправляет максимумы давлений в подстилающее стекло. С течением времени все новые и новые резонансы выходят в стекло. Из-за излучения в стекло упругая энергия, запасенная в трансдьюсере (пленка), убывает. Соответственно с течением времени амплитуды последовательных максимумов гиперзвука убывают (пила на рис. 3). Промежутки времени между максимумами коэффициента  $\Delta R(t)/R_0$ , связанные с Бриллюэновским отражением, равны периоду (2). Положения максимумов во времени для фронтального и тыльного случаев отличаются. Ср. положения первого максимума в этих двух случаях на один и тот же момент времени на рис. 3.

Это ясно обусловлено тем, что при фронтальном облучении максимум давления формируется на стадии  $t \approx 0$  на фронтальной границе. Такому максимуму требуется время, чтобы пройти пленку и войти в стекло. Тогда как при тыльном облучении максимум давления формируется на стадии  $t \approx 0$  на контакте и практически сразу входит в стекло. Соответственно фронтальная гиперзвуковая волна начинается с небольшого скачка и затем подрастает до максимума, см. рис. 3. А тыльный гиперзвук начинается сразу с максимума давления.

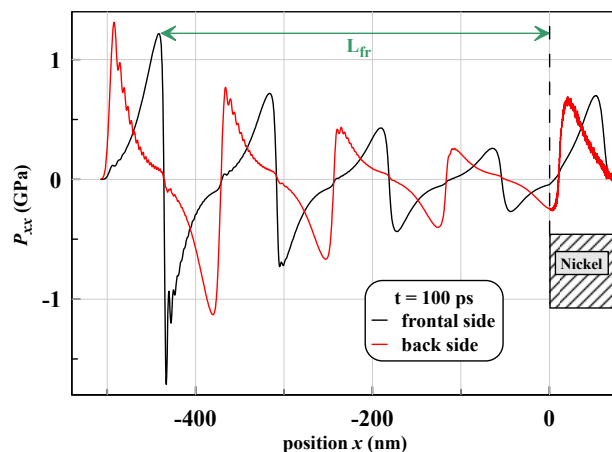


Рис. 3. Показаны два мгновенных поля продольных механических напряжений. Цвета, как на рис. 2, относятся к случаям фронтального и тыльного облучений. В этих двух случаях поглощенные энергии  $F_{abs}$  суть 10.9 (фронтальное облучение) и 10.3 мДж/см<sup>2</sup>. Координата  $x$  отсчитывается от начального положения контакта. В процессе движения смещение контакта мало и поэтому в выбранном на рисунке масштабе незаметно. Происхождение Бриллюэновских осцилляций связано с интерференцией между первым самым сильным гребнем гиперзвука и контактом. Максимумы коэффициента  $\Delta R(t)/R_0$  при фронтальном облучении имеют место в моменты  $t^*$ , в которые длина  $L_{fr}$  равна целому числу длин  $c_{gl}T_{Brillouin}$  (2). Аналогично для тыльного случая.

При распространении гиперзвука его амплитуда уменьшается в основном из-за нелинейного эффекта, обусловленного ослаблением треугольного скачка давления. В дозвуковом течении, которое имеет место за скачком, на фронт скачка приходят характеристики со все более и более слабыми значениями давления [17]. В нашей ситуации амплитуда лидирующего максимума примерно 1 ГПа. Это значение мало по сравнению с объёмным модулем  $\sim 70$  ГПа стекла. Поэтому нелинейное затухание идет медленно, см. детальный анализ затухания в статье [18]. На рассматриваемых нами отрезках времени им можно пренебречь.

Поэтому в случае тыльного облучения амплитуда Бриллюэновских осцилляций  $\Delta R(t)/R_0$  меняется совсем мало - лидирующий скачок имеет постоянную амплитуду. На этом скачке неизменяющейся амплитуды, с одной стороны, и контакте, с другой стороны, происходит интерференция диагностического света. Интерференция происходит в моменты времени, когда расстояние между движущимся скачком и контактом становится равным целому числу перио-

дов (2).

Другое дело фронтальный случай. Здесь главный вклад в отражение диагностических импульсов связан с фронтальным скин-слоем пленки. Бриллюэновские осцилляции слабо модулируют это основное отражение. Постепенно из-за передачи тепла из пленки в стекло имеет место остывание пленки. В данной версии гидродинамического кода теплопроводностью стекла пренебрегаем. Вследствие остывания пленки в эксперименте коэффициент отражения повышается. На рис. 1, 2 это выглядит, как медленное приближение осциллирующей черной кривой к зеленой штриховой горизонтали  $\Delta R = 0$ . При уменьшении фронтальной поглощённой энергии относительное остывание происходит быстрее.

Из рис. 3 следует, что амплитуды акустической волны по давлению, плотности и изменению показателя преломления стекла вследствие уплотнения примерно одинаковы во фронтальном и тыльном случаях. При этом отношение амплитуд коэффициента  $\Delta R(t)/R_0$  порядка 1:5 в этих двух случаях, см. рис. 2. Отсюда следует заключение о том, что пропускание света пленкой на длине волны диагностического импульса 793 нм по порядку величины равно 1/5. В случае гладкой сплошной пленки без дефектов пропускание было бы на уровне (1), и Бриллюэновские осцилляции при фронтальном облучении не наблюдались бы при точности измерений применяемой нами аппаратуры; в нашем случае в пленке присутствуют дефекты в виде шаровидных наночастиц и зазоров вокруг них, см. ниже.

### 3. ПРОПУСКАНИЕ СВЕТА

Определено пропускание света образцом из пленки никеля толщиной 73 нм на стеклянной подложке. Это образец, на котором проводились эксперименты. Результаты по нему были представлены выше на рис. 1 и 2.

Были измерены спектры пропускания (рис. 4) и отражения (рис. 5) для указанного образца при нормальном падении электромагнитного излучения в интересующем нас диапазоне длин волн 370 – 950 нм (длина волны нагревающего и зондирующего импульсов 396 и 793 нм, соответственно). В качестве источника излучения в диапазоне длин волн 210 – 2500 нм использовался комбинированный дейтерий-вольфрамовый галогенный источник DH-2000 (Ocean Optics).

Для регистрации спектра прошедшего и отраженного излучения использовался высокочув-

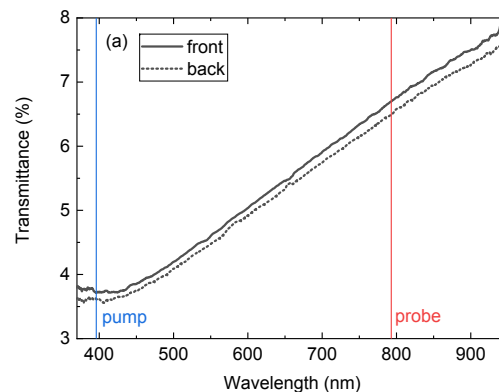


Рис. 4. Спектр пропускания нашего образца (пленка никеля толщиной 73 нм на стеклянной подложке) при фронтальном и тыльном нормальном падении света в диапазоне длин волн 370 – 950 нм. При фронтальном падении на длине волны 793 нм пропускание  $T = 6.7\%$ , на длине волны 396 нм –  $T = 3.7\%$ .

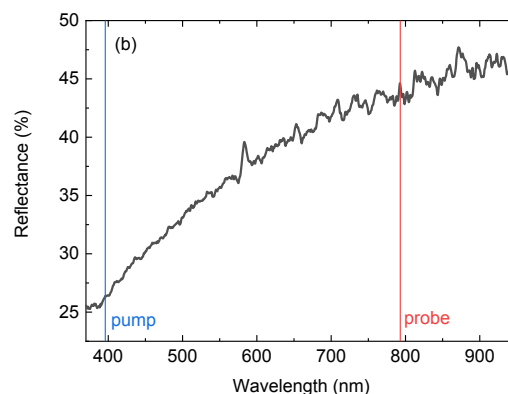


Рис. 5. Спектр отражения нашего образца при фронтальном нормальном падении света в диапазоне длин волн 350 – 950 нм. При фронтальном падении на длине волны 793 нм отражение  $R = 44\%$ , на длине волны 396 нм отражение  $R = 26\%$ .

ствительный оптоволоконный спектрофотометр AvaSpec-2048 (Avantes) с высокой фотометрической чувствительностью в спектральном диапазоне 200 – 1100 нм и оптическим разрешением до 0.04 нм. Для коллимации светового пучка света, выходящего из оптоволоконна DH-2000 и фокусировке его на линзу оптоволоконна, ведущего к спектрометру AvaSpec-2048, использовались 2 микрообъектива ЛОМО 8x. Диаметр светового пучка на образце составлял  $d = 3$  мм.

Для измерения пропускания (отражения) образцов были измерены спектры окружающего фона, а также падающего на образец и пропущенного (отраженного) через образец излучения. Спектры пропускания  $T$  и отражения  $R$  рассчитывались по формулам

$$T = (I_T - I_{backg}) / (I_0 - I_{backg}),$$

$$R = (I_R - I_{backg}) / (I_0 - I_{backg}),$$

где  $I_{backg}$  - спектр излучения окружающего фона,  $I_0$  - спектр падающего излучения на образец,  $I_T$  - спектр прошедшего через образец излучения,  $I_R$  - спектр отраженного от образца излучения.

При фронтальном падении излучения на фронтальную (свободную) поверхность нашего образца пропускание составило  $T = 6.7\%$  на длине волны 793 нм и  $T = 3.7\%$  на длине волны 396 нм, см. рис. 4. Отражение при этом составило  $R = 44\%$  на длине волны 793 нм и  $R = 26\%$  на длине волны 396 нм, см. рис. 5. Сравним данные по отражению от нашего образца со случаем нормального падения на объёмную мишень из никеля. Согласно справочным данным [19] имеем  $R = 74\%$  [20],  $R = 69\%$  [21],  $R = 90\%$  (Werner et al. 2009) все три значения для  $\lambda = 793$  нм и  $R = 51 - 63\%$  для 396 нм. Видим, что, во-первых, существует значительный разброс справочных данных и, во-вторых, наш образец отражает существенно слабее.

На рис. 6 показаны спектры пропускания ( $T$ ), отражения ( $R$ ) и спектр потерь на поглощение и рассеяние на неоднородностях ( $A$ ). Спектр  $A$  - это расчетная величина:  $A = 1 - R - T$ . Данные приведены для нашего образца при нормальном падении электромагнитного (ЭМ) излучения с фронтальной стороны (т.е. со стороны воздуха) в интересующем нас диапазоне длин волн 370 - 950 нм. Поглощение и рассеяние  $A$  при нормальном падении излучения составило величину  $A = 49.3\%$  на длине волны 793 нм и  $A = 70.3\%$  на длине волны 396 нм.

На рис. 7 показан спектр пропускания одной 150 микронной стеклянной пластинки (используемой в качестве подложки) без пленки на ней в диапазоне длин волн 370 - 950 нм. При нормальном падении на плоскость пластинки на длине волны 793 нм пропускание  $T = 92\%$ , на длине волны 396 нм -  $T = 90.4\%$ .

Рассмотрим единичное отверстие в плоском идеальном [8] экране с характерным размером  $d$  (диаметр "дырки"). Размер  $d$  мал по сравнению с длиной волны  $\lambda$ . Пусть на экран падает плоская ЭМ волна с интенсивностью  $I_{inc}$  и волновым вектором  $k = 2\pi/\lambda$  перпендикулярным плоскости экрана. То-

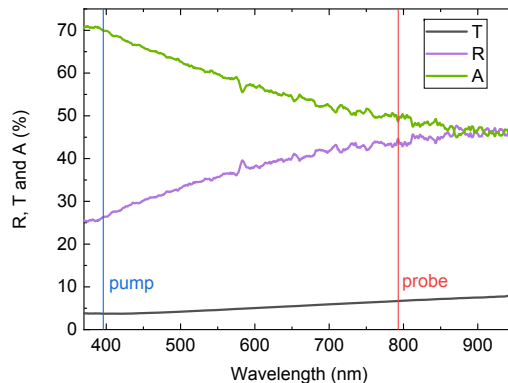


Рис. 6. Спектры пропускания, отражения и поглощения/рассеяния использованного образца с пленкой никеля 73 нм на стекле при нормальном падении электромагнитного излучения на фронтальную границу пленки металла.

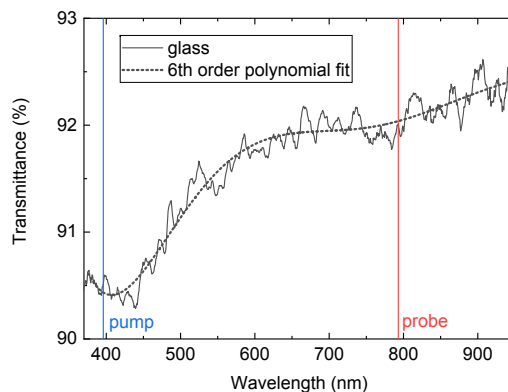


Рис. 7. Пропускание 150-мкм стеклянной пластины (подложки) в диапазоне длин волн 370 - 950 нм. При нормальном падении на длине волны 793 нм пропускание  $T = 92\%$ , на длине волны 396 нм -  $T = 90.4\%$ .

гда мощность  $P$  прошедшего излучения дается формулой

$$P \sim (kd)^4 d^2 I_{inc}. \quad (3)$$

Задача о дифракции на отверстиях сводится к задаче об излучении дипольного рассеивателя размером  $d$  [8]. Она была решена Рэлеем в 1897 году [8]. Множитель  $(kd)^4$  в формуле (3) называется релеевским фактором.

Допустим, что весь экран покрыт случайно расположенными отверстиями размером  $d$ . Пренебрегая интерференцией излучения от отверстий, будем

полагать, что прошедшая мощность складывается из суммы мощностей излучения диполей. Тогда

$$I_T \sim (kd)^4 (s_d/s) I_{inc}, \quad (4)$$

где  $s_d$  и  $s$  - суммарная площадь отверстий и общая площадь экрана.

В случае геометрической оптики, когда  $d \gg \lambda$ , релеевский фактор в формуле (4) заменяется единицей. При размерах отверстий  $\sim 100$  нм релеевский фактор не так уж мал:  $\approx 0.4$  для  $\lambda = 793$  нм и 6.3 для  $\lambda = 396$  нм.

Из приведенных оценок следует, что спектр, показанный на рис. 4, нельзя объяснить дифракцией. Спектр на рис. 4 линейно убывает при убывании длины волны. Тогда как при дифракции этот спектр должен резко расти при убывании  $\lambda$  из-за релеевского фактора - чем меньше длина волны, тем лучше эта волна преодолевает субволновые препятствия. Т.о. спектр на рис. 4 необходимо моделировать с учетом существования плазмон-поляритонов. Вернемся к этому вопросу ниже в тексте.

#### 4. ИЗМЕРЕНИЯ ОТРАЖЕНИЯ ГРЕЮЩЕГО И ДИАГНОСТИЧЕСКОГО ИМПУЛЬСОВ В НАШИХ ОПЫТАХ

В методике накачка-диагностика (pump-probe) на мишень посылается греющий импульс (накачка), а затем через промежуток времени  $t$  на мишень поступает диагностический (зондирующий) импульс. Греющий импульс приходит на мишень, находящуюся в покое при комнатной температуре, нулевом давлении и плотностях никеля и стекла, относящихся к нормальным условиям. За время, равное длительности греющего импульса  $\tau_L = 150$  фс, происходит отражение греющего импульса от пленки.

Важно то, что этот свет собирается отдельным измерительным прибором. Поэтому в расчетах используется реальный коэффициент отражения нашего образца из пленки и подложки на длине волны 396 нм. Этот коэффициент определяет важнейший параметр гидродинамических расчетов - поглощенную энергию  $F_{abs}$ .

Затем с периодом  $T_{gl} = 2n_{gl}d_{gl}/c = 1.5$  пс приходили бы отражения греющего импульса от тыльной поверхности стеклянной пластинки; здесь  $n_{gl} \approx 1.5$ ,  $d_{gl} = 150$  мкм,  $c$  - это соответственно показатель преломления и толщина пластинки стекла и скорость света в вакууме; множитель 2 связан с путем вперед и назад; оценка дана без учета угла наклона нагревающего пучка (т.е. для случая нор-

мального падения ЭМ волны). Но в нашем эксперименте греющий импульс направлен под углом 45 градусов к нормали. Поэтому эти отражения не попадают в апертуру, собирающую диагностический свет. А для отдельного измерительного прибора с его низкой чувствительностью эти малые по амплитуде отражения несущественны, поскольку чувствительность отдельного измерительного прибора на порядки величины меньше чувствительности прибора, применяемого для синхронного детектирования. Отдельный измерительный прибор применяется для определения коэффициента отражения нагревающего импульса.

Как сказано, нагревающий импульс на длине волны 396 нм падает на образец под углом 45 градусов. Зондирующий импульс на длине волны 793 нм падает по нормали на образец. Во избежание попадания на регистрирующий фотодиод диффузного отражения от мощного нагревающего импульса, перед фотодиодом установлен узкополосный интерференционный оптический фильтр на центральную длину волны зондирующего излучения.

Определяющим для нашей работы является анализ отраженного диагностического импульса. Диагностический импульс освещает мишень по нормали, имеет длину волны 793 нм и длительность 60 фс. Наша мишень является сложной, поскольку пропускает свет за счет неоднородности пленки. Очевидный и определяющий вклад в отражение связан с пленкой никеля. Добавочный малый вклад обусловлен светом, приходящим из стекла подложки. Этот вклад улавливается исключительно благодаря сверхвысокой чувствительности метода синхронного детектирования [14], применяемого в нашей работе.

Через время  $T_{gl} = 1.5$  пс в lock-in усилитель приходит отражение диагностического импульса от тыльной границы стеклянной подложки толщиной 150 мкм; диагностический импульс падает на пленку по нормали. Как сказано, основной вклад в отражение диагностического импульса связан с отражением в скин-слое пленки. Свет, отраженный от оптических неоднородностей стекла, показанных на рис. 3, поступает в усилитель через промежуток времени  $\approx 2n_{gl}L_{fr}/c$ . Если для примера подставить сюда значение текущей длины распространения гиперзвука  $L_{fr}$  с рис. 3, то получим, что это время  $\approx 4.5$  фс.

Отражение от тыльной границы стекла постоянно для каждого из повторяющихся через 1 мсек ( $= 10^{-3}$  с) диагностических импульсов. А вот отражение от неоднородностей в стекле меняется. Изме-

нения вызваны движением неоднородностей. Неоднородность мгновенного профиля показателя преломления стекла меняется вместе с распространением гиперзвука в стекле. Соответствующие изменения  $\Delta R/R_0$  фиксируются в методе синхронного детектирования. Изменения  $\Delta R/R_0$  являются функцией времени задержки  $t_{delay}$  между нагревающим и диагностическим импульсами, см. рис. 1-3;  $L_{fr} = c_{gl}t_{delay}$ , где  $c_{gl}$  - это скорость звука в стекле.

## 5. АНАЛИЗ ПОВЕРХНОСТИ ПЛЕНКИ: АТОМНЫЙ СИЛОВОЙ МИКРОСКОП

Проведен детальный анализ свойств поверхности пленок никеля разной толщины. В том числе исследована пленка толщиной 73 нм, использованная в опытах, показанных на рис. 1 и 2. Из анализа в оптический микроскоп получается, что эта поверхность обладает отличными зеркальными свойствами. Причем как с фронтальной стороны, так и со стороны контакта никель-стекло.

С помощью атомно-силового микроскопа (АСМ) (Veeco, Multimode V) в полуконтактном режиме выполнено сканирование фронтальной поверхности пленки никеля, см. рис. 8. Разрешение АСМ по вертикальной оси  $z$  (нормаль к поверхности пленки) составляет 0.05 нм. На сканах размером  $10 \times 10$  мкм<sup>2</sup> и  $1 \times 1$  мкм<sup>2</sup> на поверхности пленки никеля присутствуют отдельно расположенные структуры (выступы) высотой 10 - 30 нм и диаметром по основанию 90 - 120 нм. Несколько структур достигают значений 50 - 60 нм по высоте (рис. 8, 9). Структуры (наночастицы) имеют округлый вид наподобие застывших капель.

В качестве образца использовалась тонкая поликристаллическая пленка никеля, нанесенная подложку из боросиликатного стекла толщиной 150 мкм методом магнетронного распыления в аргоновой среде при давлении  $5 \cdot 10^{-2}$  Торр. Согласно измерениям толщины металла (АСМ Multimode V, Veeco) в месте удаленного до стекла слоя, толщина пленки составляет  $d_f = 73 \pm 2$  нм.

Значения среднеарифметической (Ra) и среднеквадратичной (Rq) поверхностной шероховатости для скана размером  $10 \times 10$  мкм<sup>2</sup> составили 6.1 нм и 9.8 нм, соответственно. Для скана размером  $1 \times 1$  мкм<sup>2</sup> Ra = 4.6 нм и Rq = 6.4 нм. Для области  $0.3 \times 0.3$  мкм<sup>2</sup> (на скане размером  $1 \times 1$  мкм<sup>2</sup>), в которой отсутствуют выступающие структуры, значения шероховатости составили Ra = 0.9 нм и Rq = 1.2 нм. Размер кристаллического зерна в этой обла-

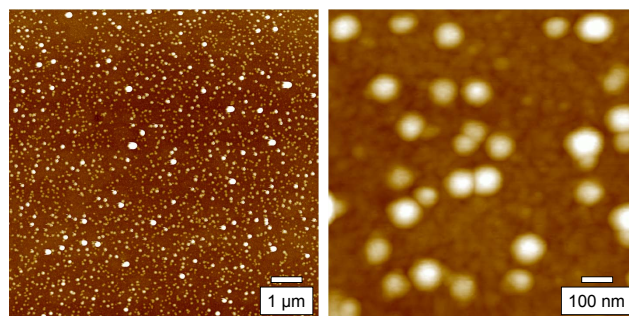


Рис. 8. Изображения поверхности пленки Ni (толщиной 73 нм), полученные на АСМ в полуконтактном режиме. На левом рисунке показан скан поверхности размером  $10 \times 10$  мкм<sup>2</sup>. На правом рисунке скан размером  $1 \times 1$  мкм<sup>2</sup>.

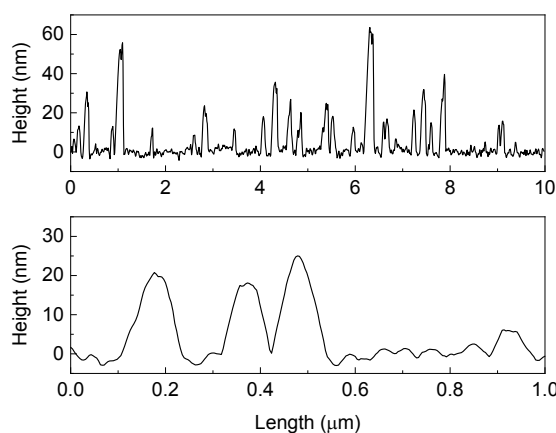


Рис. 9. Сечения (поперечные профили) изображений поверхности пленки Ni, полученных на АСМ, для сканов размером  $10 \times 10$  мкм<sup>2</sup> (верхний график) и  $1 \times 1$  мкм<sup>2</sup> (нижний график).

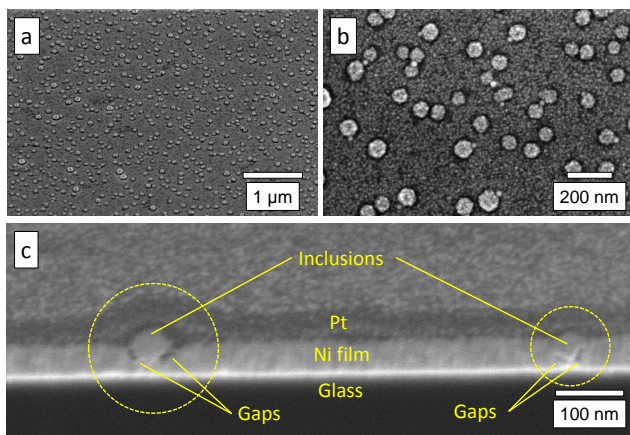
сти составляет порядка 20 нм. На рис. 9 представлены сечения (поперечные профили) пленки Ni для сканов размером  $10 \times 10$  мкм<sup>2</sup> и  $1 \times 1$  мкм<sup>2</sup>.

Т.о. сканирование поверхности с помощью АСМ не обнаруживает сквозных пор в пленке.

## 6. АНАЛИЗ ПЛЕНКИ: ЭЛЕКТРОННЫЙ МИКРОСКОП

**Наночастицы и зазоры вокруг них.** На рис. 10 показаны изображения поверхности и поперечного сечения пленки Ni, полученные с помощью сканирующего электронного микроскопа (СЭМ). Для получения изображения поперечного сечения пленки Ni, с помощью сфокусированного ионного пучка, в образце был выполнен торцевой рез. Предваритель-



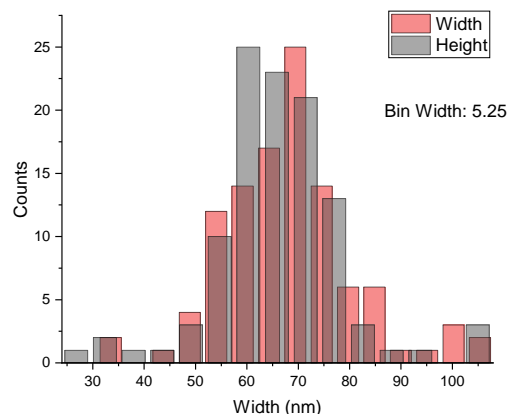


**Рис. 10.** Изображения поверхности (a, b) и поперечного (c) сечения пленки Ni, полученные с помощью СЭМ в режиме детектирования вторичных электронов. (a) Изображение поверхности пленки Ni, полученное под углом  $52^\circ$  к поверхности. (b) Увеличенное изображение поверхности пленки Ni, полученное по нормали к поверхности. (c) Изображение поперечного сечения пленки Ni, полученное после резки сфокусированным ионным пучком. Пленка содержит наномасштабные «вкрапления» (включения "Inclusions"), которые имеют зазор "gap" с пленкой. Эти многочисленные вкрапления видны в виде наноразмерных шариков на рисунках (a) и (b); см. также рис. 8.

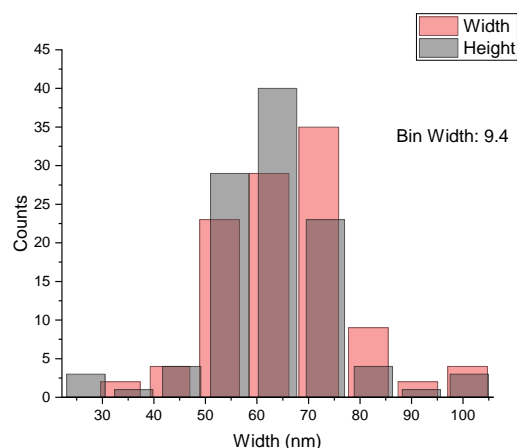
но, перед резкой ионным пучком, для защиты вещества в окрестности плоскости резки от тепловой деградации, было выполнено осаждение защитного слоя Pt с помощью электронного/ионного пучков. На рис. 10(c) этот слой виден, как горизонтальная серая полоска с надписью Pt. Полоска никеля выделена надписью Ni film. Темная область под пленкой никеля – это стекло - Glass.

Согласно представленным данным СЭМ, металлическое покрытие Ni имеет сложную структуру. Оно состоит из пленки Ni и шаровидных наноразмерных включений (частиц), как показано на рис. 10(a, b). Очень важно то, что как видно из рис. 10(c), между наночастицами (Inclusions) и основным телом пленки (Ni film) имеет место пустой зазор шириной порядка нескольких единиц нанометров. На рис. 10(c) эти зазоры отмечены надписями gap. Как будет видно ниже, электродинамика, связанная с шаровидными включениями и зазорами, определяет пропускание света через нашу пленку и отражение от нее, см. рис. 4 и 5.

**Индивидуальные размеры и статистика наночастиц.** В силу важности шаровидных включений для понимания механизма пропускания света, были детально изучены распределения включе-



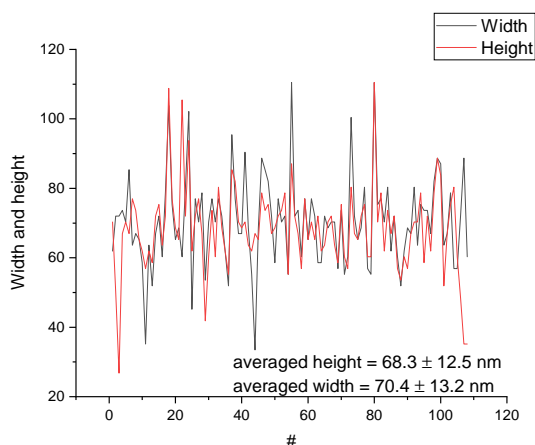
**Рис. 11.** Распределение частиц ( $N = 108$  штук) по размеру на площади  $S = 2.5 \times 1.7 = 4.25$  мкм<sup>2</sup>. В пленке присутствуют включения (наночастицы) с латеральным размером около  $70 \times 60$  нм<sup>2</sup> (ширина  $\times$  высота). Им соответствуют максимумы на гистограмме. Шаг бинирования 5.25 нм.



**Рис. 12.** Распределение частиц ( $N = 108$  штук) по размеру на площади  $S = 2.5 \times 1.7 = 4.25$  мкм<sup>2</sup>. В пленке присутствуют включения (наночастицы) с латеральным размером около  $72 \times 64$  нм<sup>2</sup> (ширина  $\times$  высота). Им соответствуют максимумы на гистограмме. Шаг бинирования 9.4 нм.

ний по их диаметрам. Включения расположены хаотично, без выделенного направления упорядочения. Средний период расположения частиц (по данным Фурье анализа) находится около 200 нм. Распределение частиц по размерам (ширина  $\times$  высота) приведено на рис. 11.

Так, на площади  $S = 2.5 \times 1.7 = 4.25$  мкм<sup>2</sup> присутствует  $N = 108$  частиц с латеральным размером

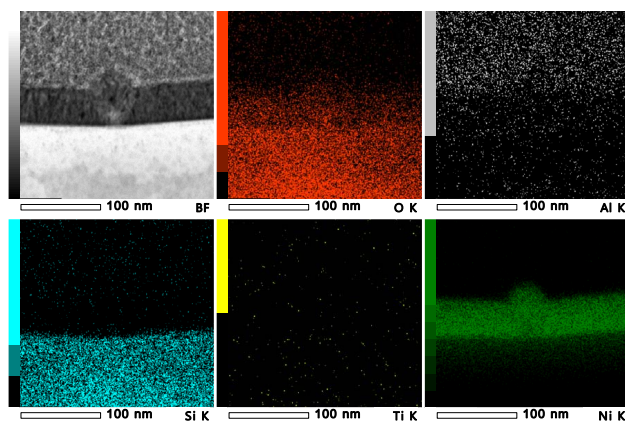


**Рис. 13.** Ширина и высота частицы в зависимости от номера частицы в выборке из 108 наночастиц. Согласно указанным распределениям средние величины ширины и высоты суть —  $70.4 \pm 13.2$  нм на  $68.3 \pm 12.5$  нм, соответственно.

$70 \times 60$  нм<sup>2</sup>, которому соответствуют максимумы на гистограмме на рис. 11 при использованном шаге бинирования  $\Delta = 5.25$  нм;  $\sqrt{S/N} \approx 0.2$  мкм. При шаге бинирования  $\Delta = 9.4$  нм латеральный размер составляет  $72 \times 64$  нм<sup>2</sup> (ширина  $\times$  высота), что соответствует максимумам гистограммы на рис. 12. Согласно рис. 13, средний размер частиц составляет  $70.4 \pm 13.2$  нм на  $68.3 \pm 12.5$  нм (ширина  $\times$  высота).

**Анализ площади, занимаемой вкраплениями.** На площади СЭМ фотографии с размерами  $S = 2.5 \times 1.7 = 4.25$  мкм<sup>2</sup> частицы занимают 8-9% от общей площади. Эта оценка сделана с учетом, что частицы плоские (2D); т.е. здесь речь идет о поперечном сечении наночастиц плоскостью верхней поверхности пленки. В приближении, что частицы имеют форму полусферы, их реальная площадь должна вырасти в 2 раза (поскольку площадь круга  $\pi r^2$ , а площадь полусферы  $2\pi r^2$ ). Следовательно, суммарная боковая поверхность выступающей части наночастиц составляет примерно 16-18% от общей площади пленки.

**Элементный анализ твёрдого вещества методом энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (Energy-dispersive X-ray spectroscopy, EDX).** Элементный анализ был выполнен с помощью метода энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии, входящей в состав комплекса просвечивающего электронного микроскопа (ПЭМ) JEM-2100 (HRP). Для этого, предварительно, с помощью сфокусированного ионного пучка из образца была вырезана ламель



**Рис. 14.** Фотографии ПЭМ ламели в светлом поле (BF), а также содержания в пленке, включения (частице) и подложке элементов O, Al, Si, Ti и Ni согласно сигналу характеристического рентгеновского излучения (переходы на внутреннюю K-оболочку). Вывод: как видим, пленка и шаровидная наночастица одинаковы по составу.

толщиной примерно 100 нм.

На рис. 14 показана фотография ПЭМ ламели в светлом поле (BF - bright field). На этом же рисунке приведены фотографии, которые демонстрируют химический состав самой пленки и наночастицы в ней. Показаны содержания в пленке, включении (наночастице) и подложке элементов O, Al, Si, Ti и Ni в соответствии с сигналом характеристического рентгеновского излучения. Этот сигнал формируется благодаря переходам на внутреннюю K-оболочку. Данные получены с разрешением  $512 \times 512$  пикселей при ускоряющем напряжении 200 кВ и зондовом токе 1 нА.

Главный вывод. Согласно этим данным, пленка и включение (частица) имеют идентичный элементный состав. Наличие кислорода предположительно связано с окислением ламели при переносе ее из отсека СЭМ в отсек ПЭМ по воздуху.

## 7. НЕОДНОРОДНОСТИ ПЛЕНКИ И ПЛАЗМОННЫЙ МЕХАНИЗМ ПРОПУСКАНИЯ СВЕТА

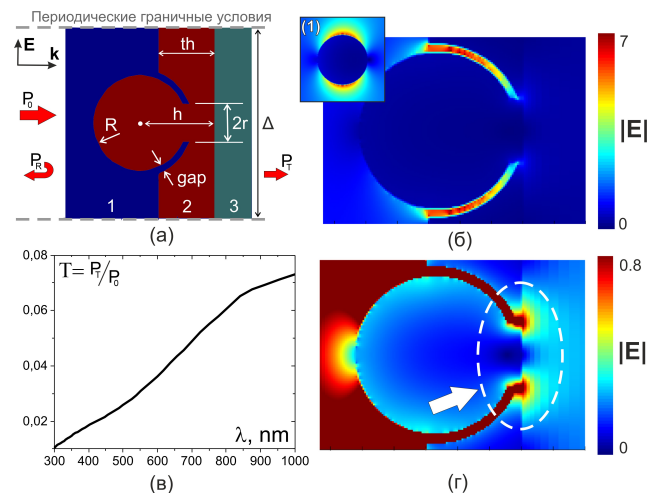
Для объяснения аномального пропускания света оптически толстыми пленками никеля выполнено их численное электродинамическое моделирование методом конечных разностей во временной области (Finite Difference in Time Domain, FDTD); оптически толстыми названы пленки, толщина которых намного больше толщины скин-слоя. Коэффициент

пропускания сплошной однородной пленки из никеля толщиной 73 нм (0.2% при  $\lambda \sim 700$  нм) примерно в 30 раз меньше, чем экспериментально наблюдаемые значения (рис. 4). Последние, очевидно, обусловлены наличием в экспериментальном образце многочисленных дефектов. Согласно приведенным выше результатам электронной микроскопии и спектроскопического EDX-анализа, дефекты представляют собой шарообразные никелевые частицы с радиусом  $R \sim 50$  нм, глубоко внедрённые в никелевую пленку так, что между частицей и материалом пленки имеется полный щелевой зазор (рис. 10).

Моделирование пленки с такими дефектами проводилось в трехмерной геометрии, схематически представленной на рис. 15(a). Данные о диэлектрической проницаемости никеля взяты из справочника [22]. Для упрощения расчетов массив случайно расположенных дефектов аппроксимирован бесконечным упорядоченным массивом прямоугольной симметрии с кубической элементарной ячейкой, ограниченной в поперечных направлениях периодическими граничными условиями. Период  $\Delta$  выбран равным 130 нм – такое значение, с одной стороны, примерно соответствует экспериментально наблюдаемой концентрации дефектов на поверхности пленки и, с другой стороны, оно является субволновым и достаточно малым для исключения коллективных эффектов вследствие упорядоченности моделируемого массива шарообразных частиц. В продольном направлении ячейка ограничена поглощающими граничными условиями в виде идеально согласованных слоев (perfectly matched layers, PML).

В результате численного моделирования установлено, что оптические свойства дефекта обусловлены главным образом дипольным резонансом сферической никелевой частицы. При этом, если для уединенного никелевого шара с  $R = 50$  нм в соответствии с теорией Ми дипольный резонанс (вставка к рис. 15(б)) центрирован на длине волны  $\approx 450$  нм, то при углублении шара в пленку резонанс уширяется и смещается в ближний ИК диапазон. Это сопровождается перераспределением ближнего электрического поля шара в область зазора, где оно испытывает существенное усиление (рис. 15(б)).

Усиленное электромагнитное поле в зазорах каждого из дефектов туннелирует на другую сторону пленки (рис. 15(г)) и распространяется далее. Причем волны от отдельных дефектов интерферируют (в направлении распространения падающей волны) конструктивно, давая в сумме единую прошедшую волну существенной амплитуды, что и обуславливает повышенный коэффициент пропус-



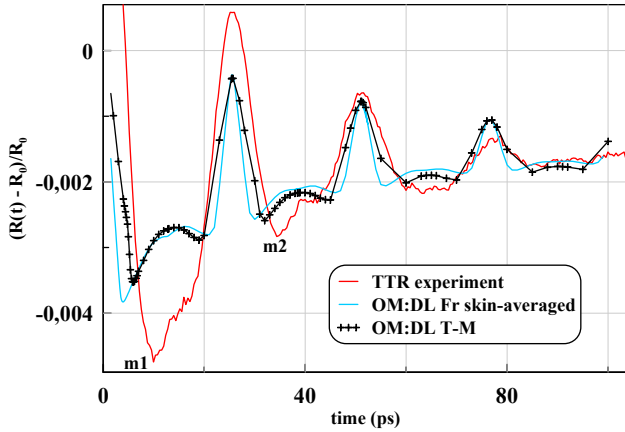
**Рис. 15.** Результаты численного моделирования: (а) – моделируемая геометрия, вид сбоку (1 – вакуум, 2 – никель, 3 – стеклянная подложка,  $R = 50$  нм,  $\text{gap} = 5$  нм (это ширина зазора),  $r = 20$  нм,  $h = 54$  нм,  $\text{th} = 60$  нм,  $\Delta = 130$  нм); (б) – распределение амплитуды электрического поля в плоскости вектора  $E$  при  $\lambda = 1000$  нм (на вставке с цифрой (1) для сравнения показано распределение поля в окрестности уединённого никелевого шара в вакууме на длине волны дипольного резонанса); (в) – результат расчета спектральной зависимости коэффициента пропускания пленки с дефектами; (г) – распределение амплитуды электрического поля при  $\lambda = 1000$  нм с измененным масштабом цветовой шкалы для демонстрации туннелирования электромагнитного поля из щелевых зазоров в стеклянную подложку.

кания никелевой пленки с дефектами. Результаты расчета данного коэффициента приведены на рис. 15(в). Как видно, они хорошо согласуются с экспериментальной зависимостью на рис. 4 и по характеру, и по абсолютным значениям, что подтверждает правильность сделанных выводов.

Наличие дефектов влияет и на отраженную от пленки волну, уменьшая коэффициент отражения (по сравнению с коэффициентом отражения гладкой пленки:  $\approx 70\%$  при  $\lambda \approx 700$  нм) приблизительно вдвое (ср. с рис. 5), что также следует из результатов проведённого численного моделирования.

## 8. ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ТЕРМОРЕФЛЕКТАНСА

Для анализа результатов измерений, показанных на рис. 1 и 2, нами был разработан комплекс программ. Первым элементом комплекса является двухтемпературный гидродинамический код (см.



**Рис. 16.** Сравнение измеренной в опыте временной зависимости  $\Delta R(t)/R_0$  (красная кривая), (взята с рис. 1, 2) с теорией. Имеются два теоретических расчета. Голубая теоретическая кривая не использует метод трансфер-матрицы, см. текст. Черная кривая с крестиками получена с применением комплекса программ из трех элементов. Комплекс включает расчет отражения по мгновенному неоднородному распределению диэлектрической постоянной (6) с помощью метода трансфер-матрицы. Позиции крестиков на черной кривой - это моменты времени  $t_i$ , в которые берутся профили (5), (6) и подсчитывается отклик (7).

Приложение). С помощью этого кода промоделировано происходящее в составной (пленка/подложка) мишени. Пример показан выше на рис. 3.

Второй элемент - это оптическая модель однотемпературного никеля для длины волны 793 нм; в однотемпературном состоянии температуры электронной и ионной подсистем одинаковы. Оптическая модель основана на приближении Друде-Лоренца. При этом параметры модели извлекаются из справочных данных, см. Приложение. Третий элемент - суть программа, основанная на методе трансфер-матрицы.

На рис. 16 показан расчет, выполненный с помощью данного комплекса программ. Скорость света велика. Фс диагностический импульс очень короткий. Поэтому берется серия  $i = 1, 2, \dots$  мгновенных гидродинамических профилей

$$\rho(x, t_i), T(x, t_i) \quad (5)$$

для набора фиксированных моментов времени  $t_i$ . Считаем, что можно пренебречь изменением гидродинамических профилей (5) за время прохождения диагностического лазерного импульса. Действительно, время прохождения и отражения света от скин-слоя равно  $2\delta_{sk}/c = 0.1$  фс =  $10^{-4}$  пс, дли-

тельность диагностического импульса  $60$  фс =  $0.06$  пс, а гидродинамическое время  $t_{hd}$  ограничено снизу акустическим масштабом  $t_{s-sk} = \delta_{sk}/c_s = 2$  пс; т.е.  $t_{hd} > t_{s-sk}$ . За гидродинамическое время происходит заметное изменение профилей (5).

С помощью профилей (5) и оптической модели никеля (см. Приложение) вычисляется мгновенный текущий профиль комплексной диэлектрической постоянной

$$\epsilon(x, t_i). \quad (6)$$

Наконец, с помощью методики трансфер-матрицы вычисляем коэффициент отражения никеля

$$\Delta R(t_i)/R_0. \quad (7)$$

по профилю (6) как функцию времени. Это функция времени, поскольку профиль (6) меняется со временем. Результат расчета показан черной кривой с крестиками на рис. 16.

Каждый крестик на черной кривой - это значение (7) в момент времени  $t_i$ . В эти моменты берутся профили (5) и затем (6) для численного моделирования отражения монохроматического излучения. В нашем теоретическом расчете не учитывается вклад отражения от стеклянной подложки, имеющий место благодаря наличию сквозных пор в пленке никеля. Поэтому расчетное отражение  $\Delta R/R_0$  полностью формируется в скин-слое.

Сокращенные обозначения на рис. 16 имеют следующий смысл. Экспериментальные измерения называются TTR (transient thermorelectance). Это измерения  $\Delta R/R_0$  в технике синхронного детектирования - красная кривая. Оптическая модель названа ОМ. При этом DL - это вычисление в модели Друде-Лоренца. В случае с усреднением плотности и температуры по скин-слою нет необходимости применять метод трансфер-матрицы, поскольку распределение (6) является однородным (не зависит от  $x$ ), но меняется во времени. Расчет голубой кривой на рис. 16 ведется по формулам Френеля (поэтому написано Fr).

Наконец, буквы Т-М (черная кривая с крестиками (7)) на рис. 16 относятся к расчету без усреднения по скин-слою. Применяется неоднородный профиль (6) и метод трансфер-матрицы (Т-М). Т.е. в случае черной кривой учитывается мгновенный профиль волны. Временная зависимость профиля отслеживает вход и выход (выход после отражения от фронтальной границы) акустической волны из скин-слоя.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выше представлены исследования нашей особой пленочной структуры. Исследования опираются на современные средства эксперимента - это pump-probe методика (нагрев-диагностика), измерения терморелефтанса посредством синхронного детектирования (применяется lock-in усилитель), АСМ (атомный силовой микроскоп), СЭМ (сканирующая электронная микроскопия), FIB (focused ion beam, резка сфокусированным ионным пучком), ТЕМ (transmission electron microscope, просвечивающий электронный микроскоп), спектральные измерения пропускания и отражения, EDX (элементный анализ твёрдого вещества методом энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии).

Теоретическая часть статьи структурно делится на два направления. Во-первых, это оптоакустика. И, во-вторых, аналитическое и численное моделирование электродинамических явлений, связанных с фотоникой, плазмоникой и дифракционными эффектами нашей пленки. По первому направлению создана двухтемпературная (2Т) физическая модель никеля (2Т уравнение состояния, описано взаимодействие электронной и фононной подсистем, построена теория коэффициента теплопроводности, охватывающая 2Т и 1Т состояния никеля) и выполнено 2Т гидродинамическое моделирование с учетом упругости. Создана оптическая модель никеля и проведены необходимые численные расчеты оптоакустического терморелефтанса. В данных расчетах применяется метод трансфер-матрицы с очень большим числом промежуточных слоев.

Полученные результаты позволяют говорить о создании особой пленочной структуры, которая, надеемся, найдет свой круг современных приложений в фотонных, плазмонных и оптоакустических технологиях.

С одной стороны, структура представляет собой новый класс устройств сверхординарного пропускания света; Extraordinary Transmission [3–6]. Новизна и отличия тут в том, что (а) вместо сквозного отверстия имеется наночастица и несквозной зазор и (б) расположение шариков случайное, не периодическая решетка.

С другой стороны, пленка является эффективным трансдьюсером [1,2]; т.е. устройством, преобразующим свет в звук.

## ПРИЛОЖЕНИЯ

## 9. ПОСТАНОВКА ОПЫТОВ

В качестве источника излучения использовалась фемтосекундная лазерная система на кристалле титан-сапфира с регенеративным усилением чирпированных импульсов (Coherent, Legend), генерирующая на выходе оптические импульсы длительностью 60 фс на длине волны 793 нм с частотой повторения 1 кГц. Измерения временной динамики дифференциального коэффициента отражения  $\Delta R(t)/R_0$ , наведенного в исследуемом образце нагревающим импульсом, регистрировались с помощью зондирующего импульса. Зондирование осуществлялось в оптической схеме «возбуждение–зондирование» (pump-probe) в неколлинеарной геометрии – пучки pump и probe идут под разными углами относительно нормали к поверхности, см. рис. 17. Измерения основаны на применении высокоточной методики фазочувствительного (синхронного) детектирования. Здесь  $\Delta R(t) = R(t) - R_0$ , а  $R$  и  $R_0$  – лазерно-индуцированный и исходный коэффициенты отражения от исследуемого образца.

Нагревающий импульс после преобразования в кристалле во вторую гармонику (ВГ) имел длительность  $\tau_{pump} = 150$  фс и длину волны  $\lambda_{pump} = 396$  нм. С помощью линзы с фокусным расстоянием  $f = 200$  мм нагревающий импульс фокусировался под углом падения  $45^\circ$  на поверхность образца в эллиптическое пятно диаметром  $d_x = 130$  и  $d_y = 93$  мкм (по уровню  $1/e$ ). Изменения коэффициента отражения  $\Delta R(t)/R_0$  регистрировались в центре области нагрева зондирующим импульсом длительностью  $\tau_{probe} = 60$  фс на длине волны  $\lambda_{probe} = 793$  нм, см. рис. 17, на котором показаны большое и малое пятна освещения. Зондирующий импульс фокусировался с помощью микрообъектива 4X/0.10 по нормали к поверхности образца в пятно диаметром  $d_x = d_y = 15$  мкм (по уровню  $1/e$ ). Пространственное распределение интенсивности нагревающего и зондирующего импульсов в фокальной плоскости соответствует гауссовому.

Исследуемый образец располагался на моторизованном трехкоординатном трансляторе. Временная задержка между нагревающим и зондирующим импульсом изменялась в диапазоне -3 до 300 пс с помощью моторизованного транслятора, обеспечивающего минимальный шаг по времени  $\sim 7$  фс (при перемещении в 1 мкм). Временной шаг варьировался от 30 фс на ранних временах (от -3 до 3 пс) до 400 фс на поздних временах (от 3 до 300 пс), что обусловлено различной скоростью изменения сигнала  $\Delta R(t)/R_0$  в различные моменты после воздействия

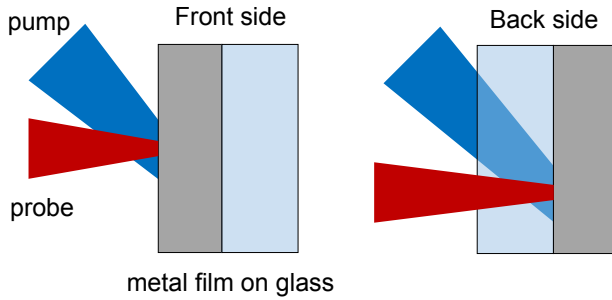


Рис. 17. (а) Нагрев и зондирование с фронтальной стороны (интерфейс воздух/металл). (б) Нагрев и зондирование с тыльной стороны (интерфейс стекло/металл). Длина волны зондирующего импульса смещена в красную сторону, поэтому изображена красным цветом.

нагревающего импульса.

Малые изменения коэффициента отражения, которые для исследуемого образца в выбранном диапазоне флюенсов нагревающих импульсов составляли около  $\Delta R(t)/R_0 \sim 10^{-4} - 10^{-2}$ , регистрировались с использованием методики фазочувствительного (синхронного) детектирования. Эта методика позволяет обнаружить искомый сигнал малой амплитуды на определенной частоте среди широкополосного шумового фона высокой амплитуды. Оптические сигналы зондирующего импульса, отраженного от образца и падающего на образец, регистрируются с помощью двух одинаковых фотодетекторов в балансном режиме и направляются на дифференциальный (разностный) вход синхронного усилителя (СУ).

Во избежание попадания на фотодиод (который регистрирует отраженный зондирующий сигнал) диффузного отражения от нагревающего импульса на частоте 500 Гц и иного рассеянного излучения, перед фотодиодом установлен узкополосный оптический фильтр. Этот фильтр пропускает излучение на центральной длине волны зондирующего излучения с шириной полосы пропускания 40 нм (по уровню FWHM).

СУ измеряет сигнал  $\Delta R(t)/R_0$  на частоте следования нагревающих импульсов 500 Гц, которая получается после прореживания 1 кГц последовательности с помощью механического прерывателя. Частота следования зондирующих импульсов составляет 1 кГц. При оптимально подобранных параметрах СУ (временная константа  $T = 30$  мс, крутизна среза фильтра низких частот 24 Дб/окт) время накопления (измерения) сигнала  $\Delta R(t)/R_0$  при каждой временной задержке между нагревающим и зонди-

рующим импульсами составляет  $t = 10 \times T = 300$  мс, а эквивалентная ширина шумовой полосы  $\text{ENBW} = 5/(64T) = 2.6$  Гц. Таким образом, сигнал  $\Delta R(t)/R_0$  измеряется на частоте 500 Гц в полосе шириной 2.6 Гц.

При модулировании нагревающих импульсов на частоте 500 Гц минимальные регистрируемые изменения сигнала  $\Delta R(t)/R_0$  в применённой схеме составляли  $\sim 5 \times 10^{-5}$ . Значения чувствительности такого масштаба относятся к весьма хорошим результатам. Для сравнения, при использовании фемтосекундных генераторов с модуляцией нагревающих импульсов на намного большей частоте до 1–20 МГц минимальные изменения  $\Delta R(t)/R_0$  составляют до  $10^{-6} - 10^{-7}$ .

Нагревание и зондирование осуществлялись с фронтальной (интерфейс воздух/металл) и с тыльной (интерфейс стекло/металл) сторон образца (рис. 17). Измеренный коэффициент отражения на  $\lambda_{\text{pump}} = 396$  нм под углом  $45^\circ$  составил  $R = 0.14$  и  $R = 0.19$  с фронтальной и тыльной сторон, соответственно. Измерение временной динамики дифференциального коэффициента отражения  $\Delta R(t)/R_0$  проводилось в диапазоне падающих энергий нагревающего импульса от 0.1 до 1.2 мкДж.

В соответствии с измеренными значениями коэффициента отражения, диапазон поглощенных флюенсов  $F_{\text{abs}}$  составил от  $0.91 \pm 0.02$  до  $10.9 \pm 0.2$  мДж/см<sup>2</sup> с фронтальной, и от  $0.86 \pm 0.02$  до  $10.3 \pm 0.2$  мДж/см<sup>2</sup> с тыльной сторон, соответственно. Последние значения поглощенного флюенса ( $10.3 - 10.9$  мДж/см<sup>2</sup>) являлись максимально возможными неразрушающими флюенсами для данного образца при частоте нагревающих импульсов 500 Гц (период следования pump-импульсов 2 мс). До этих значений флюенса наведенные изменения в образце были обратимы и результаты измерений воспроизводились от серии к серии.

Для каждой энергии нагревающего импульса измерения временной динамики дифференциального коэффициента отражения  $\Delta R(t)/R_0$  в диапазоне от -3 до 300 пс выполнялись по  $N = 5$  раз. Погрешность измерения величины  $\Delta R(t)/R_0$  определялась как величина среднеквадратичного отклонения (СКО) при усреднении по  $N = 5$  измерениям.

## 10. ГИДРОДИНАМИЧЕСКИЙ КОД

**Зацепление за вещество - координата по Лагранжу.** Поскольку поперечные размеры нагре-

вающего лазерного пятна  $\sim 100$  мкм значительно превышают и толщину пленки  $0.073$  мкм, и глубину  $< 2$  мкм, до которой гиперзвук проходит в стекло в нашем эксперименте, моделирование проводилось в одномерной (1D) геометрии. При этом искомые переменные зависят от одной пространственной координаты  $x$ . Будем отсчитывать её от начального (невозмущенного) положения контакта пленки и стекла. Пусть ось  $x$  направлена от контакта в сторону пленки. В 1D геометрии удобно использовать координаты Лагранжа (см. [23, глава VIII, §2]).

При моделировании системы, состоящей их слоев веществ с существенно разными термомеханическими свойствами (никель и стекло), это особенно удобно. Дело в том, что лагранжева координата контакта разных веществ не меняется во времени - так сказать заморожена в вещество; в лагранжевой схеме мы пренебрегаем взаимной диффузией веществ. Хотя, разумеется, этот контакт смещается по эйлеровой оси  $x$  с течением времени. Эйлерова ось относится к лабораторной системе координат.

В качестве лагранжевой координаты  $x^0$  берем эйлерову координату  $x$  покоящихся до воздействия лазера материальных частиц:  $x^0 = x$ . В 1D геометрии частицами являются тонкие плоские слои вещества. Траектории частиц во времени суть  $x(x^0, t)$ . В разностной аппроксимации шаг по лагранжевой сетке  $\Delta x^0$  выбирается нами так, чтобы масса вещества внутри каждого шага была одинакова. Если в начальном состоянии распределение плотности однородно по пространству, то такой шаг будет один и тот же по всему пространству, занятому этим однородным веществом.

В рассматриваемом случае имеются слои с различной начальной плотностью: пленка никеля с плотностью  $\rho_0|_{Ni} = 8.907$  г/см<sup>3</sup> и подложка из стекла с плотностью  $\rho_0|_{gl} = 2.23$  г/см<sup>3</sup>. Будем соблюдать условие равенства масс на разностном шаге по лагранжевой переменной и в никеле, и в стекле. Из-за меньшей плотности стекла шаг  $\Delta x^0$  в стекле будет больше:  $\Delta x^0|_{gl} = \Delta x^0|_{Ni}(\rho_0|_{Ni}/\rho_0|_{gl}) = 3.99\Delta x^0|_{Ni}$ .

**Двухтемпературная специфика.** Во время действия фемтосекундного лазерного импульса и до времен порядка времени электрон-ионной релаксации  $t_{eq}$  температуры электронной  $T_e$  и ионной  $T_i$  подсистем металла отличаются [24–28]; это двухтемпературные (2Т) состояния:  $T_e > T_i$  [29, 30]. Дело в том, что энергию лазерного импульса поглощают электроны зоны проводимости [31] во внутри- и межзонных переходах; в никеле последние доминируют. При старте в наших расчетах от комнатной

температуры  $T_{rt}$  эти электроны являются сильно вырожденными:  $T_{rt} \ll T_F$ ,  $T_F = E_F/k_B$ ,  $E_F$  - фермиевская энергия  $\sim 10$  эВ. Отношение  $T_F/T_{rt}$  порядка 300. Такого же порядка и соотношение теплоемкостей электронной и фононной подсистем при комнатной температуре.

Поэтому нагрев электронов с их максимальной температурой до нескольких кК (килоКельвин), не означает, что после электрон-ионной релаксации металл будет расплавлен. Ситуация с температурой при переходе с 2Т на 1Т стадию определяется, во-первых, разумеется, энергией  $F_{abs}$  и, во-вторых (это менее тривиально), тем, как соотносятся толщина пленки  $d_f$  и толщина слоя прогрева  $d_T$  в объемной мишени [13, 32]. Зависимость от указанного отношения связана с громадным значением теплопроводности металла [13] для снижения температуры  $T_e$  в скин-слое на 2Т стадии.

За время порядка  $t_{eq}$  температуры подсистем выравниваются. В этом заключается электрон-ионная релаксация. В рассматриваемых нами экспериментальных условиях поглощенная электронами энергия лазера  $F_{abs}$  ограничена величиной  $11$  мДж/см<sup>2</sup>. При этом значении  $F_{abs}$  и при нашей пленке (никель,  $d_f \approx 70$  нм, теплопроводность стекла мала), после релаксации температур  $T_e$  и  $T_i$ , температура никеля на фронтальной (т.е. облучаемой) поверхности увеличивается примерно на  $800$  К по сравнению с комнатной, см. рис. 18; температура плавления никеля  $1728$  К. Хотя максимальное значение электронной температуры  $T_e$  при поглощении  $10.9$  мДж/см<sup>2</sup> и длительности нагревающего импульса  $150$  фс составляет  $T_e|_{max} \approx 2.8$  кК, см. рис. 18.

Зеленая и черная кривые на рис. 18 относятся к плотности. Направленные влево синие стрелки на этих кривых указывают на вертикальную ось плотностей слева. Минимум плотности на черной кривой смещён относительно минимума зеленой кривой примерно на  $3$  пс - показано двусторонней стрелкой 3. Это связано с тем, что столько времени нужно волне разрежения, чтобы пройти толщину скин-слоя. При этом глубина минимумов примерно одинакова. Дело в том, что температура на поверхности "fr" выше, чем в толще скин-слоя. Зато в толще скин-слоя начинает действовать существенное растягивающее напряжение. Это снижает плотность. Указанные два эффекта примерно компенсируют друг друга. Соответственно плотность никеля в минимумах оказывается примерно одинаковой.

Максимум электронной температуры  $T_e(t)$  на рис. 18 находится на нисходящем крыле возле пе-

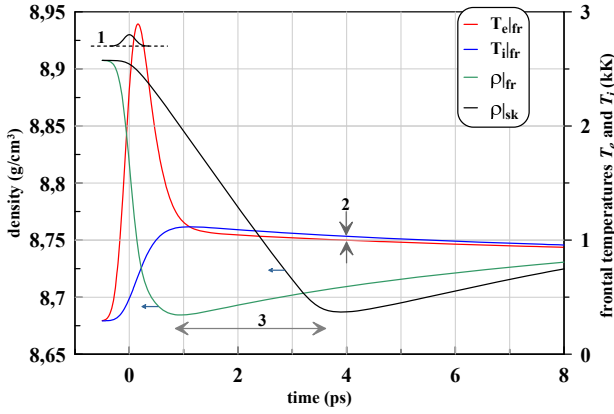


Рис. 18. Развитие ситуации в первые пикосекунды после воздействия нагревающего импульса - его ширина во времени показана на врезке 1. Время  $t$  отсчитывается от максимума интенсивности  $I_{pump}(t)$  этого импульса. Зеленая  $\rho|_{fr}$  ( $\rho$  на фронтальной "fr" поверхности) и черная  $\rho|_{sk}$  (плотность  $\rho$ , усредненная по скин-слою) кривые показывают снижение плотности из-за расширения и рост плотности из-за остывания скин-слоя. См. текст.

региба мощности  $I_{pump}(t)$  нагревающего импульса - сравни максимум зависимости  $T_e(t)$  и зависимость  $I_{pump}(t)$ , показанную на врезке 1.

Резкий слом временных зависимостей  $T_e(t)$  и  $T_i(t)$  обусловлен сменой режимов от 2Т к 1Т. Двухтемпературная (2Т) стадия длится около 1 пс: время релаксации в никеле при данной поглощённой энергии равно  $t_{eq} \approx 1$  пс. После слома имеет место инверсия температур  $T_e$  и  $T_i$  - метка 2 на рис. 18. На 1Т стадии происходит медленный подъем плотности из-за остывания приповерхностного слоя пленки.

**Двухтемпературная гидродинамика.** Чтобы непрерывным образом описать и (А) двухтемпературную (2Т) стадию, и (В) постепенный переход от 2Т к 1Т (однотемпературные состояния  $T_e = T_i$ ) стадии, и (С) развитие событий на 1Т стадии, требуется двухтемпературная физическая модель и 2Т гидродинамический код (2Т-гд код). Этот код был разработан в нашей группе. Он успешно применяется ко многим задачам, возникающим в физике ультракоротких лазерных воздействий. Система уравнений двухтемпературной гидродинамики [33, 34], используемая в 2Т-гд коде, имеет вид:

$$\frac{\partial x(x^0, t)}{\partial t} = v(x^0, t), \quad (8)$$

$$\rho \frac{\partial x(x^0, t)}{\partial x^0} = \rho_0, \quad (9)$$

$$\frac{\partial v(x^0, t)}{\partial t} = -\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial P(x^0, t)}{\partial x^0}, \quad P = P_e + P_i, \quad (10)$$

$$\frac{\partial E_e(x^0, t)}{\partial t} = \frac{1}{\rho_0} \frac{\partial}{\partial x^0} \left( \frac{\kappa_e \rho}{\rho_0} \frac{\partial T_e}{\partial x^0} \right) - \frac{P_e}{\rho_0} \frac{\partial v}{\partial x^0} - \alpha(T_e - T_i) + \frac{Q(x^0, t)}{\rho}, \quad (11)$$

$$\frac{\partial E_i(x^0, t)}{\partial t} = -\frac{P_i}{\rho_0} \frac{\partial v}{\partial x^0} + \alpha(T_e - T_i), \quad (12)$$

где  $P_e, P_i$  — электронное и ионное давление,  $E_e, E_i$  — удельные (в расчете на единицу массы) электронная и ионная энергии,  $\alpha$  — коэффициент электрон-ионного теплообмена,  $\kappa_e$  — коэффициент электронной теплопроводности; ионная теплопроводность в металлах мала по сравнению с электронной и здесь мы ею пренебрегаем. В указанной системе уравнений (8) — уравнение кинематики, (9) — уравнение сохранения массы (уравнение непрерывности), которое в координатах Лагранжа сводится к определению текущей плотности, (10) — закон сохранения импульса (уравнение движения Эйлера), расплавленные металлы на наших пространственновременных масштабах с хорошей точностью можно считать идеальными жидкостями, (11) и (12) — закон сохранения энергии (тепловой баланс), записанный по отдельности для электронной и ионной подсистем.

По сравнению с 2Т моделью Анисимова и др. [26] в уравнениях 2Т-гд кода учтено гидродинамическое движение вещества. Такое движение является важным как при повышенных значениях поглощённой энергии  $F_{abs}$ , так и в ситуации с относительно малыми значениями  $F_{abs}$ . При больших энергиях  $F_{abs}$  — это метод описания формирования лазерных УВ, кратера в мишени и лазерного факела. При малых энергиях  $F_{abs}$  данный подход требуется для анализа оптоакустических явлений.

В стекле (т.е. при  $x^0 < 0$ ,  $x^0 = 0$  соответствует контакту никель-стекло) при малых нагревах свободными электронами в зоне проводимости пренебрегаем. Соответственно  $\alpha = 0$ ,  $P_e = 0$ ,  $E_e = 0$ , и уравнение (11) не используется. Теплопроводность стекла мала. В данной серии расчетов пренебрегаем этой теплопроводностью. Амплитуды давлений в стекле малы по сравнению с объёмным модулем стекла. Следовательно, в таком приближении движение в стекле является адиабатическим. Поэтому в подложке в качестве уравнения состояния мы ис-



пользуем адиабату (изэнтропу)  $P(\rho)$ :

$$p_{gl}(\rho) = (\rho - 2.23)(10.3 + 5.047(\rho - 3.52)^2)e^{0.13\rho}. \quad (13)$$

В изэнтропе (13) плотность  $\rho$  и давление  $p_{gl}$  задаются в единицах  $\text{г/см}^3$  и ГПа. Изэнтропа (13) исходит из точки, соответствующей комнатному состоянию. Эта изэнтропа близка к холодной кривой стекла, поскольку комнатная температура невелика. Холодной кривой называют нулевую изотерму, совпадающую с нулевой изэнтропой. Она исходит из точки с нулевыми давлением и температурой.

Поглощение лазерного излучения описывается тепловым источником

$$Q(x^0, T) = \frac{F_{abs}}{\sqrt{\pi}d_{skin}\tau_L} Q_t(t) Q_x(x^0)$$

с временной зависимостью  $Q_t(t) = \exp(-t^2/\tau_L^2)$ , где  $\tau_L$  - длительность импульса. Как видим, время  $t$  отсчитывается от максимума лазерного импульса. Нагрев  $Q(x^0, T)$  - это единственная причина всех последующих гидродинамических и термодинамических явлений. Этот драйвер действует только через тепловое уравнение для электронов (11). Он создает электронное давление и посредством нагрева ионной подсистемы формирует ионное давление. Эти давления через силовое уравнение (10) приводят вещество в движение. При этом суммарный импульс остается равным нулю, поскольку импульсом облака поглощаемых и отражаемых фотонов мы пренебрегаем.

При облучении через стекло, закон Бугера со скин-слоем никеля, прилегающим к контакту, имеет вид  $Q_x(x^0) = \exp(-x^0/d_{sk})$ . При облучении со стороны свободной (фронтальной "fr") поверхности, поглощение лазерной энергии имеет место в скин-слое у фронтальной границы. Соответственно получаем  $Q_x(x^0) = \exp((x^0 - d_f)/d_{sk})$ , где  $d_f$  - толщина пленки.

Как указывалось выше, при использовании лагранжевых переменных сохраняется разделение никеля и стекла по координате  $x^0$ . Это позволяет при  $x^0 < 0$  (стекло) использовать в уравнениях (8-10) адиабату стекла  $P = P_{gl}(\rho)$  ( $P_e = 0$ ). Тепловые уравнения (11,12) в стекле не нужны. А при  $x^0 > 0$  (никель) применять уравнения, разработанные для никеля.

**Граничные условия.** Никель и стекло связаны граничными условиями. Это, во-первых, кинематическое  $x(x^0 - 0, t) = x(x^0 + 0, t)$  условие непрерывного примыкания соседствующих веществ на их контактной границе. Во-вторых, динамическое условие - непрерывность давления на границе. В при-

ближении теории упругости для никеля на контакте непрерывны нормальная составляющая напряжения со стороны никеля и давление в стекле, которое описываем уравнением адиабаты. И, в-третьих, тепловые условия.

В случае контакта двух теплопроводных сред это условия непрерывности температуры и теплового потока. В данной серии расчетов будем пренебрегать малой теплопроводностью стекла. Тогда тепловое условие ставится только для никеля. Оно требует равенства нулю теплового потока в никеле на контакте со стеклом.

**Физическая модель.** В наших предыдущих работах был вычислен электронный вклад в свободную энергию никеля [35, 36]. Вычисления были осуществлены с помощью квантовомеханических подходов методом функционала плотности (DFT - density functional theory). Для удобства использования при гидродинамическом численном моделировании, полученные DFT-данные были описаны с помощью компактных аналитических выражений. Эти выражения имеют вид:

$$E_e = \frac{KS}{K+S} \left( \frac{\rho}{\rho_0} \right)^{0.6} \quad [\text{Дж/м}^3],$$

$$P_e = 1.1 \frac{KS}{K+S} \left( \frac{\rho}{\rho_0} \right)^{1.1} \quad [\text{Па}],$$

$$K = 1077T_e^2/2 \quad [\text{Па}], \quad S = 1.275 \times 10^{-4} T_e^{1.3} \quad [\text{Па}].$$

В этих выражениях энергия приведена в расчете на единицу объема, электронная температура  $T_e$  дается в градусах Кельвина,  $\rho_0 = 8.9 \text{ г/см}^3$ .

Для ионной подсистемы используется табулированное широкодиапазонное уравнение состояния (УРС) никеля, построенное К.В. Хищенко, см. [37-45]. Сумма электронного и ионного уравнений термодинамических состояний даёт нам термодинамику, необходимую для работы 2Т-гд кода.

Коэффициент электрон-ионного теплообмена считался как

$$\alpha = \alpha_0 (T_{rt}/T_e)^{0.3},$$

где  $\alpha_0 = 7 \times 10^{17} \text{ Вт/(К м}^3)$ . Это аппроксимация DFT-расчетов [46, 47] в интересующем нас диапазоне средних по величине электронных температур  $0.3 < T_e \text{ [кК]} < 5$ . Здесь  $T_{rt} = 0.3 \text{ кК}$  - это комнатная температура. Например, при  $T_e = 2 \text{ кК}$  эта формула дает значение коэффициента, равное  $\alpha = 4 \times 10^{17} \text{ Вт/(К м}^3)$ . Это довольно большое значение коэффициента электрон-фононного взаимодействия. Поэтому электрон-ионная релаксация протекает достаточно быстро, см. рис. 18,  $t_{eq} \approx 1 \text{ пс}$ .

Коэффициент электронной теплопроводности в твердом никеле подсчитывался как комбинация электрон-электронного  $\kappa_{ee}(\rho, T_e)$  и электрон-ионного  $\kappa_{ei}(\rho, T_e, T_i)$  вкладов [35, 36, 46, 48]:

$$\kappa_e = 1/(1/\kappa_{ee}(x_k, t_k) + 1/\kappa_{ei}(x_k, t_k, T_i)) \text{ Вт/(м К)},$$

$x_k = \rho/\rho_{0k}$  – нормировка плотности,  $\rho_{0k} = 9.0191 \text{ г/см}^3$  – плотность никеля при нулевых давлении и температуре,  $t_k = 6T_e/T_F(x_k)$  – нормировка электронной температуры на фермиевскую энергию (температуру),  $T_F(x) = 8.6 \times 11605 x^{2/3} \text{ К}$ . Здесь использована фермиевская энергия никеля 8.6 эВ, определенная по данным квантовомеханического расчета методом функционала плотности (DFT – density functional theory) [36, 46].

Электрон-электронный вклад в теплопроводность в единицах Вт/(м К) аппроксимировался аналитическим выражением через нормированные плотность и электронную температуру

$$\kappa_{ee}(x_k, t_k) = \frac{0.04214}{x_k} \frac{t_k}{1 + 17.322 t_k + 11.551 t_k^2}. \quad (14)$$

Пропорциональность температуре  $T_e$  в формуле (14) следует из начального участка (т.е. при малых  $T_e$ ) зависимости электронной теплоемкости от температуры  $T_e$ . Знаменатель учитывает факторы, связанные, во-первых, с насыщением роста теплоемкости с температурой  $T_e$ , во-вторых, с частотой электрон-электронных столкновений  $\nu_{ee}$  и, в-третьих, с изменением скорости электронов на поверхности Ферми. В частоту  $\nu_{ee}$  входят рассеяния s-электронов на s- и d-электронах [48–54].

Расчеты электрон-фононного вклада в теплопроводность  $\kappa_{ei}$  были выполнены в рамках двух-параболической модели никеля [36, 46]; также, как и расчеты  $\kappa_{ee}$  (14). Приближенная аналитическая зависимость для вклада  $\kappa_{ei}$  (в единицах Вт/(м К)) имеет вид

$$\kappa_{ei}(x_k, t_k, T_i) = 96 \frac{x_k}{x_{rt}} \frac{y(x_k)}{y(x_{rt})} \frac{T_{rt}}{T_i} \frac{c_v(t_k)}{c_v(t_{rt})}. \quad (15)$$

В двух-параболической модели плотность электронных состояний (электронный спектр, Density-of-States – DoS) приближенно описывается двумя отдельными параболой. Одна из парабол относится к s-зоне, другая – к d-зоне [36, 46]. Факторы  $x_k/x_{rt}$  и  $y(x_k)/y(x_{rt})$  в выражении (15) следуют из дебаевской теории фононов в кристалле твердого тела [49], см. на сайте журнала приложение к этой статье с подробными вычислениями, правда для меди. Далее эта модель была обобщена на никель.

Отношение  $y(x_k)/y(x_{rt})$  пропорционально квадрату амплитуды нулевых колебаний атомов в решетке  $\hbar^2/(m_{atom} k_B \theta_D)$ , где  $\theta_D$  – дебаевская температура [49, 50].

Частоты электрон-фононных столкновений пропорциональны квадрату амплитуды тепловых колебаний атомов в решетке. Этот квадрат пропорционален фоновой температуре. С этим связано появление множителя с отношением температур  $T_{rt}/T_i$ , где  $T_{rt}$  – комнатная температура. Благодаря отношению  $y(x_k)/y(x_{rt})$  амплитуда тепловых колебаний нормируется на амплитуду нулевых колебаний.

При температуре  $T_{rt}$  в 1Т состоянии ( $T_i = T_e$ ) теплопроводность никеля равна 96 Вт/(м К). Последний фактор в выражении (15) обусловлен зависимостью электронной теплопроводности металла от электронной теплоемкости. Через него в выражении (15) входит зависимость  $\kappa_{ei}$  от электронной температуры.

Вспомогательные функции, использованные в выражении (15), имеют вид

$$y(x) = (1 + \beta) \frac{x^{2a+1}}{1 + \beta x^{a+1}},$$

$$\beta = \frac{a - b}{b + 1}, \quad a = 2.019690, \quad b = 0.680616$$

$$c_v(t) = t \frac{1 + 5.269902 t^2}{1 + 3.059328 t^{2.094269}},$$

$x_{rt} = \rho_0/\rho_{ok}$ ,  $\rho_0$  – плотность никеля при комнатной температуре,  $T_{rt} = 300 \text{ К}$ ,  $t_{rt} = 6T_{rt}/T_F(x_{rt})$ . Коэффициенты  $a$  и  $b$  – это показатели степеней двухстепенной аппроксимации холодной кривой никеля по плотности. Холодная кривая  $p_{cold}(\rho)$  является одновременно нулевой изэнтропой и нулевой изотермой. Степень  $a$  характеризует отталкивание, а степень  $b$  – притяжение.

**Учет упругости никеля в 2Т модели.** Принципиальным отличием твердого вещества от других фазовых состояний (жидкость, газ) является силовая реакция на деформацию формы. При изменении формы возникает сдвиговое напряжение, которое добавляется к изотропному гидростатическому давлению, определяемому уравнением термодинамического состояния (УРС). Это положение сохраняется и при рассматриваемом здесь одномерном (1D) течении вдоль оси  $x$ .

Т.е. при одноосной деформации эта деформация также приводит к появлению сдвигового напряжения. В 1D геометрии деформация заключается в изменении длины отрезка  $\Delta x$  в лабораторной системе координат. Изменение длины связано с изменением плотности. При этом в поперечных направлениях

длины отрезков  $\Delta y$  и  $\Delta z$  остаются неизменными. Т.е. при изменении плотности меняется форма прямоугольного параллелепипеда  $\Delta x \times \Delta y \times \Delta z$ .

Добавку от упругости учитываем только в никеле. Течение в стекле по-прежнему описываем с помощью уравнения адиабаты (13). При однотемпературном (1Т) одноосном (1D) движении вдоль оси  $x$  имеем

$$\begin{aligned} P &\Rightarrow P_{xx} = P(\rho, T) - S_{xx}, \\ E|_{sum} &\Rightarrow E(\rho, T) + \left(\frac{4}{3}G\right)(\partial\xi/\partial x^0)^2/(2\rho). \end{aligned} \quad (16)$$

$$\xi = x(x^0, t) - x^0, \quad S_{xx} = \left(\frac{4}{3}G\right)\partial\xi/\partial x^0.$$

В формулах (16) величина  $G$  – это модуль сдвига. Как говорилось выше в тексте,  $x$  и  $x^0$  – это эйлерова (координата материальной частицы в лабораторной системе координат) и лагранжева (постоянная метка материальной частицы) координаты. То есть в системе уравнений гидродинамики к давлению по Паскалю  $P(\rho, T)$  добавляется продольная компонента сдвигового напряжения. Полная внутренняя энергия  $E|_{sum}$  при этом состоит из двух слагаемых. Во-первых, это гидростатическая внутренняя энергия  $E(\rho, T)$  и, во-вторых, это потенциальная энергия упругой деформации в расчете на единицу массы

$$E_{elast} = (4/3)G(\partial\xi/\partial x^0)^2/(2\rho).$$

Этот вклад в энергию обусловлен деформацией параллелепипеда  $\Delta x \times \Delta y \times \Delta z$ . В упругом случае в системе уравнений в энергетическом балансе оперируем с полной внутренней энергией  $E|_{sum}$  вместо гидростатической внутренней энергии  $E(\rho, T)$  в пластическом случае. Эта энергия вычисляется по уравнению состояния по известным плотности и температуре.

Посмотрим, как в 2Т случае изменится ситуация при переходе от пластической аппроксимации с системой уравнений (8-12) к уравнениям с учетом упругости. При учете сдвиговой упругости качественная картина движения не меняется, амплитуды изменений температур примерно сохраняются, но скорость звука возрастает. Соответственно, убывает период колебаний (см. [34]). Поэтому для аккуратного сравнения расчетных и экспериментальных временных зависимостей учет сдвигового напряжения принципиально важен. В расчетах было взято значение  $G = 82$  ГПа.

Максимальные значения продольного напряжения в условиях наших опытов являются значительными. Они достигаются на первых пикосекундах и

составляют примерно 7 ГПа для расчета с поглощённой энергией  $F_{abs} = 10.9$  мДж/см<sup>2</sup>, см. также рис. 3 и 18, иллюстрирующие данную ситуацию. Порог  $p_{pl}$  упругопластического перехода в никеле при ультракоротком воздействии весьма высок:  $p_{pl} \sim 50$  ГПа [55]. При механических напряжениях ниже этого порога никель необходимо описывать в упругой аппроксимации.

В связи со сказанным отметим, что при ультракоротких воздействиях происходит сильное сближение порога  $p_{pl}$  и порога  $p_m$ , при котором имеет место плавление металла на фронте ударной волны [56, 57]. При темпах деформации ниже  $10^6$  сек<sup>-1</sup> указанные пороги отличаются на 2-3 порядка. Ультракоротким импульсам соответствуют темпы деформации порядка  $10^9$  сек<sup>-1</sup>. При этом пороги  $p_{pl}$  и  $p_m$  разнятся менее, чем на порядок.

## 11. МЕТОД ТРАНСФЕР-МАТРИЦЫ

Основной вклад в отражение от пленки металла, достаточно толстой по отношению к масштабу  $\delta_{sk}$ , дает скин-слой. Слой прилегает к облучаемой поверхности. При фронтальном воздействии это граница пленки никеля с воздухом. Нас будет интересно отражение на диагностической длине волны  $\lambda_{probe} = 793$  нм. Для этой длины волны толщина скин-слоя  $\delta_{sk} = 13 - 14.3$  нм [19].

Берем с определенным запасом по толщине слой  $L$  у поверхности, который толще, чем величина  $\delta_{sk}$ . Расчет проведен для слоя толщиной  $L = 30$  нм. Будем использовать гидродинамические профили (5), выполненные с шагом по пространству  $\Delta x = 0.1$  нм. По ним с помощью оптической модели вычисляем дискретный профиль комплексной диэлектрической проницаемости (6) в слое  $L$ , который содержит  $L/\Delta x = 300$  значений комплексной величины  $\epsilon$ .

Соответственно разбиваем слой  $L$  на  $N = 300$  подслоев с координатами границы  $x_{j+1}$  между соседними подслоями, в которых волновые числа равны соответственно  $k_{j+1}$  и  $k_j$ . В этом разделе ось  $x$  направлена в сторону подложки, как и падающее излучение. Номера подслоев возрастают с удалением от стеклянной подложки, т.е. крайний слой лежит на границе с воздухом и имеет номер 300.

Тогда для амплитуд падающей  $A$  и отраженной  $B$  волн в последовательных слоях имеем рекуррентные соотношения

$$A_{j+1} = \frac{e^{-ik_{j+1}x_{j+1}}}{2} \times \quad (17)$$

$$\left[ \left( 1 + \frac{k_j}{k_{j+1}} \right) A_j e^{ik_j x_{j+1}} + \left( 1 - \frac{k_j}{k_{j+1}} \right) B_j e^{-ik_j x_{j+1}} \right]$$

$$B_{j+1} = \frac{e^{ik_{j+1} x_{j+1}}}{2} \times \quad (18)$$

$$\left[ \left( 1 - \frac{k_j}{k_{j+1}} \right) A_j e^{ik_j x_{j+1}} + \left( 1 + \frac{k_j}{k_{j+1}} \right) B_j e^{-ik_j x_{j+1}} \right].$$

Пренебрегаем излучением, входящим в слой  $L$  со стороны подложки. Тогда, полагая  $A_1 = 1$ ,  $B_1 = 0$ , коэффициент отражения от такой многослойной структуры из последовательности подслоев находим как

$$R = |B_N/A_N|^2 \quad (19)$$

При волновом числе в вакууме  $k_0 = 2\pi/\lambda$ , где  $\lambda$  - длина волны в вакууме, в каждом однородном подслое комплексное волновое число  $k = k_0 n$  определяется его комплексным показателем преломления  $n = n_1 + i n_2$ , где

$$n_1 = \sqrt{\frac{\sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2} + \epsilon_1}{2}}, \quad n_2 = \sqrt{\frac{\sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2} - \epsilon_1}{2}}$$

с действительной  $\epsilon_1$  и мнимой  $\epsilon_2$  частями диэлектрической проницаемости.

## 12. ОПТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ НИКЕЛЯ

**Модификация модели Друде-Лоренца.** Для сравнения с экспериментом (см. рис. 16) требуется оптическая модель никеля. Эта модель нужна для того, чтобы пересчитывать данные гидродинамического моделирования в значения терморекфлектанса (7). Оптическая модель позволяет определять отклонения от известной величины диэлектрической проницаемости никеля при комнатных условиях. Отклонения вызваны вариацией плотности и температуры никеля возле их исходных значений, соответствующих комнатным условиям.

Разработанная нами оптическая модель опирается на приближение Друде-Лоренца с четырьмя неизвестными величинами и известные три справочные значения диэлектрической проницаемости  $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$  и электрического сопротивления  $\rho_{res}$  при комнатных условиях. Один параметр модели остается свободным. Этот параметр используется так, чтобы обеспечить наилучшее согласие с экспериментально измеренной зависимостью терморекфлектанса (7) от времени, см. рис. 16.

В приближении Друде-Лоренца (Д-Л) действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости могут быть записаны соответственно в виде

$$\epsilon_1(\omega_{probe}) = 1 - f \frac{\hat{\omega}_p^2}{1 + \hat{\nu}^2} + f_0 \frac{\hat{\Omega}_p^2(\hat{\omega}_0^2 - 1)}{(\hat{\omega}_0^2 - 1)^2 + \hat{\nu}_0^2} \quad (20)$$

$$\epsilon_2(\omega_{probe}) = f \frac{\hat{\omega}_p^2}{1 + \hat{\nu}^2} \hat{\nu} + f_0 \frac{\hat{\Omega}_p^2 \hat{\nu}_0}{(\hat{\omega}_0^2 - 1)^2 + \hat{\nu}_0^2}. \quad (21)$$

В этих выражениях все частоты - это безразмерные частоты. Они безразмерены на частоту  $\omega_{probe}$  падающего диагностического излучения на длине волны  $\lambda = 793$  нм. Безразмерные величины имеют специальный значок сверху, например,  $\hat{\omega}_p$ . Параметры  $\hat{\Omega}_p, \hat{\nu}, \hat{\nu}_0, \hat{\omega}_0$  - это безразмерные величины. Они имеют следующий смысл: плазменная частота d-электронов, частоты релаксации s- и d-электронов и частота осцилляций связанного уровня;  $f$  и  $f_0$  - это силы осцилляторов. Силы осцилляторов являются безразмерными числами. Частоту осциллятора  $\omega_0$  относим к электронам d-зоны.

Безразмерный квадрат плазменной частоты s-электронов  $\hat{\omega}_p$  при их концентрации  $n_s$  может быть записан в виде

$$\hat{\omega}_p^2 = \frac{\alpha^2}{\pi} n_s a_B^3 \left( \frac{\lambda}{a_B} \right)^2.$$

Здесь  $a_B$  - боровский радиус,  $\alpha$  - постоянная тонкой структуры,  $\lambda$  - длина волны диагностического импульса.

Слагаемое с множителем  $f$  в формулах (20,21) относят к вкладу свободных электронов [58, 59]. Кроме вклада свободных электронов в полуквантовом Д-Л приближении имеется сумма членов, связанных с валентными электронами [58, 59]. В никеле свободными являются электроны s-зоны. Никель - это переходной металл с s- и d-электронами. Зонная структура никеля [Ar] 3d<sup>8</sup> 4s<sup>2</sup> или [Ar] 3d<sup>9</sup> 4s<sup>1</sup> изучена с помощью DFT (теория функционала плотности электронов) - квантовомеханического численного моделирования, см., например, статьи [46, 60, 61].

Будем относить d-электроны никеля к валентным. В интересующей нас области спектра электромагнитных (ЭМ) волн основную роль в поглощении и отражении ЭМ излучения играют s- и d-электроны. В никеле, во-первых, велика концентрация d-электронов (3d<sup>8</sup> 4s<sup>2</sup> или 3d<sup>9</sup>, т.е. d-электронов в 4 или 9 раз больше, чем s-электронов) и, во-вторых, d-зона немного выступает за уровень Ферми. В статьях [46, 61] разница между верхним краем d-зоны и Ферми уровнем обозначена, как  $E_2$ . Энергии  $E_1$  и  $E_2$  ограничивают d-зону снизу и сверху

по энергии. В никеле величина  $E_2$  положительна и мала  $\approx 2$  кК. Соответственно плотность электронных энергетических уровней на Ферми поверхности велика. Поэтому, например, коэффициент  $\gamma$  ( $c_e = \gamma T_e$ ) в никеле больше, чем, скажем, у благородных металлов;  $c_e$  - электронная теплоемкость.

Свободные электроны ответственны за внутризонные переходы. В однозонных металлах на интересующей нас частоте ЭМ излучения Лоренцевские слагаемые в формулах (20,21) можно опустить. Так обстоит дело в металлах с отрицательными и довольно большими по модулю значениями  $E_2$ . Тогда поглощение  $A = 1 - R$  обычно минимально (проценты и менее; для фотонов с энергиями меньше  $E_2$ );  $R$  - коэффициент отражения.

Другое дело переходные металлы с положительными и небольшими по величине значениями энергии  $E_2$  края d-зоны. Здесь межзонные переходы велики и доминируют над однозонными переходами. В никеле это переходы из d- в s-зону. Коэффициенты поглощения  $A$  составляют десятки и многие десятки процентов. Соответственно Лоренцевские слагаемые становятся важнее слагаемого с множителем  $f$  в формулах (20,21).

В статьях [58,59] оптические характеристики никеля описаны в широком частотном интервале. При этом Лоренцевский отрезок ряда состоит из четырех слагаемых. В нашем случае необходимо ограничиться одной длиной волны  $\lambda = 793$  нм, соответствующей частоте диагностического излучения. Поэтому в формулах (20,21) мы обрвем Лоренцевскую сумму на первом слагаемом.

**Параметры нашей оптической модели.** Обозначим

$$\frac{\Omega_0^2}{\nu_0} = p, \quad \frac{\omega_p^2 - 1}{\nu_0} = q.$$

Здесь и ниже для простоты записей значки безразмеривания над буквами типа  $\hat{\Omega}_0$  будем опускать. Тогда

$$\epsilon_1(\omega_{probe}) = 1 - f \frac{\omega_p^2}{1 + \nu^2} + f_0 \frac{p}{q^2 + 1} q$$

$$\epsilon_2(\omega_{probe}) = f \frac{\omega_p^2}{1 + \nu^2} \nu + f_0 \frac{p}{q^2 + 1},$$

откуда

$$q(\nu) = \frac{(1 - \epsilon_1)(1 + \nu^2) - f \omega_p^2}{f \omega_p^2 \nu - \epsilon_2 (1 + \nu^2)} \quad (22)$$

$$p(\nu) = \left( \epsilon_2 - f \frac{\omega_p^2}{1 + \nu^2} \nu \right) \frac{q^2(\nu) + 1}{f_0} \quad (23)$$

Обезразмерив статическую проводимость  $\sigma$  частотой  $\omega_{probe}$  диагностического света, введем величину

$$\sigma_0 = 4\pi \frac{\sigma}{\omega_{probe}} = \frac{\omega_p^2}{\nu} + \frac{\Omega_p^2}{\nu_0} = \frac{\omega_p^2}{\nu} + p(\nu). \quad (24)$$

При удельном электрическом сопротивлении никеля  $\rho_{res}$  в нОм·м и длине волны света  $\lambda$  в нм величина (24) равна

$$\sigma_0 = 60\lambda/\rho_{res}.$$

При комнатных условиях мы варьировали параметр  $\rho_{res}$  между справочными значениями от 69 [62,63] до 87 нОм·м [64]. Как говорилось выше, параметр  $\rho_{res}$  - это один из трех параметров нашей модели (вместе с  $\epsilon_{1,2}$  при комнатных условиях), которые берутся из справочной литературы.

Из (24) получаем

$$p(\nu) = \sigma_0 - \frac{\omega_p^2}{\nu}. \quad (25)$$

Приравнивая (23) и (25), получаем уравнение для функции  $\nu(f)$ , зависящей от свободного параметра нашей оптической модели  $f$ . Уравнение имеет вид:

$$\epsilon_2 = f \frac{\omega_p^2}{1 + \nu^2} \nu + \frac{\sigma_0 - \omega_p^2/\nu}{\left( \frac{(1 - \epsilon_1)(1 + \nu^2) - f \omega_p^2}{f \omega_p^2 \nu - \epsilon_2 (1 + \nu^2)} \right)^2 + 1}. \quad (26)$$

Для используемой нами длины волны пробного излучения  $\lambda = 793$  нм справочные значения действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости при комнатных условиях были взяты в двух видах. Во-первых, из работы [20]:

$$\epsilon_1 = -18.826, \quad \epsilon_2 = 21.452.$$

И, во-вторых, из работы [21]

$$\epsilon_1 = -13.54, \quad \epsilon_2 = 21.777.$$

Результаты вариации трех справочных параметров  $\epsilon_{1,2}, \rho_{res}$  в указанных выше пределах сравнивались. Затем проводилась оптимизация по свободному параметру. Свободным параметром в нашей модели выступает сила осциллятора  $f$ , связанного со свободными электронами.

**Отклик  $\epsilon$  на вариацию  $\rho$  и  $T$ .** Нестационарное гидродинамическое течение, запущенное нагревающим лазерным импульсом (pump-импульс), нетривиальным образом меняет плотность и температуру во времени и в пространстве. Т.е. в скин-слое локальные плотность и температура (5) изменяются во времени. Соответственно во времени меняются

локальные значения  $\epsilon$  (6). Следовательно, меняются амплитуды  $A_i, B_i$  в цепочке узлов  $i = 1, 2, \dots, 300$ , описанных в разделе 11. Итак, в каждый момент времени имеется мгновенное распределение амплитуды  $A_i, B_i$ , а значит мгновенное значение терморелектанса (19) и (7).

Чтобы произвести вычисление, необходимо знать, как диэлектрическая проницаемость отклоняется от своего значения при комнатных условиях при отклонении плотности и температуры никеля от комнатных значений.

Введем приведённую плотность кристалла  $\xi = \rho/\rho_0$ , где  $\rho_0 = 8.93 \text{ г/см}^3$  - плотность при нулевых давлении и температуре. При комнатных условиях приведенная плотность составляет  $x_r = 8.90/8.93$ . При варьировании плотности и температуры  $T$  квадраты плазменных частот приобретают множитель  $x/x_r$ , а частоту  $\nu$  заменяем на

$$\nu_T(x, T) = \nu \frac{x}{x_r} \cdot \frac{u(x_r)}{u(x)} \cdot \frac{\gamma + T/\theta_D}{\gamma + T_r/\theta_D} \quad (27)$$

с функцией  $u(x) = ((a + 1)x^a - (b + 1)x^b)/(a - b)$  при  $a = 1.852, b = 1.004$ . Остальные величины имеют следующий смысл:  $T_r = 293 \text{ К}$  - комнатная температура, параметр  $\gamma \simeq 12$ ,  $\theta_D = 375 \text{ К}$  - температура Дебая для никеля. Первые два множителя учитывают зависимость фермиевской скорости электронов и длины свободного пробега от плотности. Последний множитель описывает зависимость длины пробега электрона от температуры решетки кристалла.

Тогда в слое с заданными значениями температуры и плотности действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости составляют

$$\epsilon_1(x, T) = 1 - f \frac{\omega_p^2 \cdot x/x_r}{1 + \nu_T^2} + f_0 \frac{p \cdot x/x_r}{q^2 + 1} q$$

$$\epsilon_2(x, T) = f \frac{\omega_p^2 \cdot x/x_r}{1 + \nu_T^2} \nu_T + f_0 \frac{p \cdot x/x_r}{q^2 + 1},$$

Таким образом, получаемые с использованием гидродинамического кода данные об эволюции поля плотности и температуры позволяют определить оптические константы в каждом из выделенных подслоев  $i = 1, 2, \dots, 300$  и с использованием рекуррентных соотношений (17), (18) и выражения (19) найти коэффициент отражения от рассматриваемой многослойной структуры подслоев, покрывающей скин-слой.

**Чувствительность зависимости  $\Delta R(t)/R_0$  к выбору параметров оптической модели.** Как

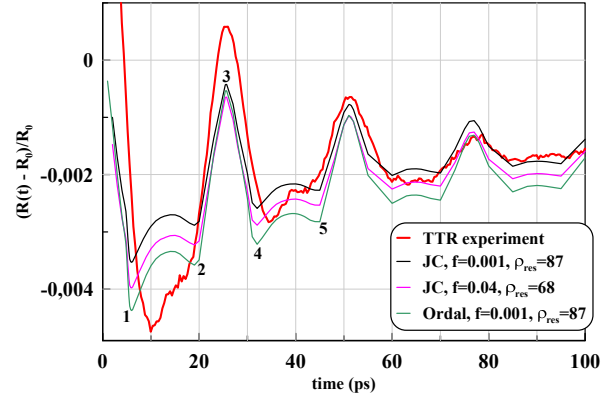


Рис. 19. Устойчивое сохранение главных особенностей расчетной зависимости  $\Delta R(t)/R_0$ : черная, малиновая и зеленая кривые при вариации параметров. См. описание обозначений в тексте. Красная кривая - это эксперимент, см. рис. 1, 2.

сказано выше, разработанная оптическая модель зависит от трех справочных величин  $\epsilon_1, \epsilon_2, \rho_{res}$  и одного свободного параметра  $f$ . Пределы вариации справочных величин были представлены выше. На рис. 19 показано, каким образом вариация параметров сказывается на пересчете гидродинамических профилей в теоретическую зависимость  $\Delta R(t)/R_0$ .

Представленные на рис. 19 примеры расчетных зависимостей  $\Delta R(t)/R_0$  охватывают пределы вариации параметров модели. Кривые (черная и малиновая) относятся к значениям  $\epsilon_1, \epsilon_2$ , взятым согласно работе [20] (обозначение "JC" на рисунке). На этих двух кривых меняются удельное электрическое сопротивление  $\rho_{res}$  между крайними справочными значениями [62–64] и свободный параметр  $f$ . Зеленая кривая относится к значениям  $\epsilon$  из работы [21].

Как видим, увеличение сопротивления никеля  $\rho_{res}$  уменьшает отражение, как и должно быть, см. рис. 19. Аналогично действует переход от диэлектрической проницаемости  $\epsilon$  по [20] к  $\epsilon$  по [21]. При нормальных условиях на диагностической длине волны 793 нм коэффициент отражения  $R_0$  заметно ниже по [21]: 0.69 против 0.74 по [20].

Кроме того, мы варьировали значение параметра  $\gamma$  в формуле (27) для частоты  $\nu_T$  в пределах от значения  $4/5$  до значения, равного 12 (учет дополнительных рассеяний электрона, обусловленных неидеальностью решетки). Влияние изменений параметра  $\gamma$  в указанных пределах мало. Оно меньше, чем отличия черной, малиновой и зеленой кривых на рис. 19.

Несмотря на вариацию черной, малиновой и зеленой расчетных кривых на рис. 19, их общая фор-

ма и положение особенностей во времени (минимумы, максимумы) практически не меняются. Первые четыре минимума 1, 2, 4 и 5 и максимум 3, связанный с первым акустическим эхом, отмечены на рис. 19. Соответствующие моменты времени (указаны в скобках в пс) суть: 1 (6.1), m1 (10; рис. 16), 2 (19.5), 3 (25.7), 4 (31.1), m2 (34.7, рис. 16), 5 (45.1).

Для сравнения важности вариации плотности и температуры был выполнен расчет, в котором в профиле (5) набор зависящих от времени температур  $T_i(t)$  был заменен на постоянную температуру 750 К. Такова температура поверхности на интервале времен 30-40 пс при рассматриваемом здесь варианте с поглощением в пленке 10.9 мДж/см<sup>2</sup>. Как говорилось выше, для вычисления временной зависимости  $\Delta R(t)/R_0$  выполняется следующая процедура. Во-первых, по набору (5) подсчитывается профиль оптических характеристик никеля (6). Во-вторых, по набору мгновенных профилей (6) определяется функция (7). Оказалось, что замена  $T_i(t)$ ,  $i = 1, 2, \dots$  на постоянную температуру практически не сказывается на функции (7).

Поясним данный результат. Изменение температуры действует двояко. Во-первых, постепенное охлаждение поверхностного слоя пленки со скин-слоем приводит к постепенному росту плотности. Это явление связано с коэффициентом теплового расширения. Во-вторых, имеет место квазиadiaбатическое изменение температуры вследствие изменения плотности в акустических волнах. Из сравнения результатов по функции (7) с переменной и постоянной температурой в профиле (5) следует, что почти полностью зависимость (7) определяется переменностью плотности. При этом переменность плотности обусловлена охлаждением, раз, и распространением акустических волн - два. Переменность температуры, связанная с движением волн, практически не влияет на зависимость (7).

Дело в том, что температура входит в результат через зависимость частоты  $\nu$  (27) от температуры. А это влияние слабо. При этом зависимость функции (7) от плотности действует через плазменные частоты. Это действие является определяющим.

**Влияние нагрева и расширения на скин.** Толщина скин-слоя  $d_{sk}(\rho, T)$  практически не меняется при нагреве и изменении плотности  $\rho$  в нашем эксперименте. Подсчет по приведенной выше оптической модели даёт значения, приведенные в таблице 1. В этой таблице приведены значения  $d_{sk}$  при изменении состояния вдоль бинодали никеля; бинодаль - это кривая сосуществования конденсированной и паровой фаз. Давление пара на бинодали опре-

Таблица 1. Толщина скин-слоя.

$\epsilon$	initial	heated
JC, $f = 0.001$ , $\rho_{res} = 87$	12.97	13.06
JC, $f = 0.04$ , $\rho_{res} = 68$	13	13.06
Ordal, $f = 0.001$ , $\rho_{res} = 87$	14.26	14.36

деляет давление насыщенного пара.

Колонка "initial" в таблице 1 относится к комнатным значениям плотности 8.907 г/см<sup>3</sup> и температуры  $T = 293$  К. В колонке "heated" даются значения  $d_{sk}$  при температуре 750 К и плотности 8.907(1-0.014) г/см<sup>3</sup>. Температура 750 К соответствует поглощённой энергии 10.9 мДж/см<sup>2</sup> на временах 10-40 пс согласно двухтемпературному гидродинамическому расчету. Уменьшение плотности на 1.4% связано с тепловым расширением никеля. Коэффициент теплового расширения взят из справочника. Строки в таблице 1 соответствуют принятым в оптической модели величинам диэлектрической проницаемости никеля  $\epsilon$  и параметрам  $f$ ,  $\rho_{res}$ , входящим в оптическую модель; см. вставку на рис. 19 (JC, Ordal) и описание этой вставки в тексте.

**Благодарности.** Экспериментальные работы поддержаны грантом Российского Научного Фонда (№ 24-19-00311). Расчеты выполнены в рамках Госзадания ИТФ им. Ландау РАН (FFWR-2024-0013). Использовано оборудование ЦКП «Лазерный фемтосекундный комплекс» ОИВТ РАН.

## Литература

1. C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H. J. Maris, J. Tauc, and J. J. Hauser, *Coherent Phonon Generation and Detection by Picosecond Light Pulses*, Phys. Rev. Lett. **53**, 989 (1984).
2. O. Matsuda, M. C. Larciprete, R. Li Voti, and O. B. Wright, *Fundamentals of Picosecond Laser Ultrasonics*, Ultrasonics **56**, 3 (2015).
3. T. Ebbesen, H. Lezec, H. Ghaemi, T. Thio, and P.A. Wolff, *Extraordinary Optical Transmission through Sub-wavelength Hole Arrays*, Nature **391**, 667 (1998).
4. J. V. Coe, J. M. Heer, S. Teeters-Kennedy, H. Tian, and K. R. Rodriguez, *Extraordinary Transmission of Metal Films with Arrays of Subwavelength*

- Holes*, Annual Review of Physical Chemistry **59**, 179 (2008).
5. E. Popov and N. Bonod, *Physics of Extraordinary Transmission through Subwavelength Hole Arrays*, Cambridge University Press, 1 (2011).
  6. M. Tavakoli, Y. S. Jalili, and Se. M. Elahi. *Rayleigh-Wood Anomaly Approximation with FDTD Simulation of Plasmonic Gold Nanohole Array for Determination of Optimum Extraordinary Optical Transmission Characteristics*, Superlattices and Microstructures **130**, 454 (2019).
  7. H. A. Bethe, *Theory of diffraction by small holes*, Phys. Rev. **66**, 163 (1944).
  8. Л.Д. Ландау и Е.М. Лифшиц, *Теоретическая физика. В десяти томах. Том VIII. Электродинамика сплошных сред*. М.: ФИЗМАТЛИТ, (2005).
  9. H. Zhang, A. Antoncicchi, S. Edward, I. Setija, P. Planken, and S. Witte, *Unraveling Phononic, Optoacoustic, and Mechanical Properties Of Metals With Light-Driven Hypersound*, Phys. Rev. Appl. **13**, 014010 (2020).
  10. G. de Haan, T. J. van den Hooven, and P. C. M. Planken, *Ultrafast Laser-Induced Strain Waves in Thin Ruthenium Layers*, Opt. Express **29**, 32051 (2021).
  11. A. Devos and R. Côte, *Strong Oscillations Detected by Picosecond Ultrasonics in Silicon: Evidence for an Electronic-Structure Effect*, Phys. Rev. B, **297**, 125208 (2004).
  12. E. Tzianaki, M. Bakarezos, G. D. Tsibidis, Y. Orphanos, P. A. Loukakos, C. Kosmidis, P. Patsalas, M. Tatarakis, and N. A. Papadogiannis, *High Acoustic Strains in Si Through Ultrafast Laser Excitation Of Ti Thin-Film Transducers*, Opt. Express **2923**, 17191 (2015).
  13. Н. А. Иногамов, В. А. Хохлов, С. А. Ромашевский, Ю. В. Петров, М. А. Овчинников, С. И. Ашитков, *Сильное возбуждение электронной подсистемы золота ультракоротким лазерным импульсом и процессы релаксации около температуры плавления*, ЖЭТФ **165**, 165 (2024).
  14. D P Blair and P H Sydenham, *Phase Sensitive Detection as a Means to Recover Signals Buried in Noise*, J. Phys. E **8**, 621 (1975).
  15. Zurich instruments. White Paper: *Principles of Lock-in Detection and The State of the Art*, (2016).
  16. V.A. Khokhlov, S.A. Romashevskiy, S.I. Ashitkov, and N.A. Inogamov, *Synchronous Detection of Nonlinear Phenomena in Opto-Acoustic Vibrations Induced in a Nanofilm by a Femtosecond Laser Pulse*, JETP Lett. **120**, 531 (2024).
  17. L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Fluid Mechanics*, **6** (2nd ed.). Butterworth-Heinemann, Oxford, United Kingdom, (1987).
  18. V.V. Shepelev, Yu.V. Petrov, N.A. Inogamov, V.V. Zhakhovsky, E.A. Perov, and S.V. Fortova, *Attenuation and Inflection of Initially Planar Shock Wave Generated by Femtosecond Laser Pulse*, Optics and Laser Technology **152**, 108100 (2022).
  19. <https://refractiveindex.info/>.
  20. P. B. Johnson and R. W. Christy, *Optical Constants Of Transition Metals: Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, and Pd.*, Phys. Rev. B **9**, 5056 (1974).
  21. M. A. Ordal, R. J. Bell, R. W. Alexander, L. L. Long, and M. R. Querry, *Optical Properties of Au, Ni, And Pb At Submillimeter Wavelengths*, Appl. Opt. **26**, 744 (1987).
  22. W.M. Haynes (Ed.), *CRC Handbook of Chemistry and Physics* (97th ed.), CRC Press, (2016).
  23. A. A. Samarskii, *The Theory of Difference Schemes*, CRC Press (2001).
  24. M. I. Kaganov, I. M. Lifshitz, and L. V. Tanatarov, *Relaxation Between Electrons and the Crystalline Lattice*, Sov. Phys. JETP **4**, 173 (1957).
  25. М. И. Каганов, М. И. Лифшиц, М. Я. Азбель, *Электронная теория металлов*, М. "Наука" (1971).
  26. S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perel'man, *Electron Emission from Metal Surfaces Exposed to Ultrashort Laser Pulses*, Sov. Phys. JETP **39**(2), 375 (1974).
  27. A. A Ionin, S. I Kudryashov, S. V Makarov, A. O. Levchenko, A. A Rudenko, I. N Saraeva, D. A Zayarny, C. R Nathala, and W. Husinsky, *Nanoscale Surface Boiling in Sub-Threshold Damage and Above-Threshold Spallation of Bulk Aluminum and Gold by Single Femtosecond Laser Pulses*, Laser Phys. Lett. **13**, 025603 (2016).



28. S. I. Kudryashov, A. A. Samokhvalov, Ya. D. Golubev, D. S. Ivanov, M. E. Garcia, V. P. Veiko, B. Rethfeld, and V. Yu. Mikhailovskii, *Dynamic All-Optical Control in Ultrashort Double-Pulse Laser Ablation*, Appl. Surf. Sci. **537**, 147940 (2021).
29. S.G. Bezhanov, A.A. Ionin, A.P. Kanavin, et al. *Reflection of a Probe Pulse and Thermal Emission of Electrons Produced by an Aluminum Film Heated by a Femtosecond Laser Pulse*, J. Exp. Theor. Phys. **120**, 937 (2015).
30. D. A. Zayarny, A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, A. A. Kuchmizhak, O. B. Vitrik, and Yu. N. Kulchin, *Pulse-Width-Dependent Surface Ablation of Copper and Silver by Ultrashort Laser Pulses*, Laser Phys. Lett. **13**, 076101 (2016).
31. P.A. Danilov, S.I. Kudryashov, K.P. Migdal, et al. *Enhancement of the Absorption of Intense Visible Femtosecond Laser Pulses in a Silver Film*, JETP Lett. **113**, 297 (2021).
32. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, S. I. Ashitkov, V. A. Khokhlov, V. V. Shepelev, P. S. Komarov, A. V. Ovchinnikov, D. S. Sitnikov, Yu. V. Petrov, M. B. Agranat, S. I. Anisimov, and V. E. Fortov, *Laser Acoustic Probing of Two-Temperature Zone Created by Femtosecond Pulse*, Contrib. Plasma Phys. **51**, 367 (2011).
33. S. I. Anisimov, N. A. Inogamov, Yu. V. Petrov, V. A. Khokhlov, V. V. Zhakhovskii, K. Nishihara, M. B. Agranat, S. I. Ashitkov, and P. S. Komarov, *Interaction of Short Laser Pulses with Metals at Moderate Intensities*, Appl. Phys. A **92**, 939 (2008).
34. V. A. Khokhlov, V. V. Zhakhovsky, K. V. Khishchenko, N. A. Inogamov, and S. I. Anisimov, *Metal Film on Substrate: Dynamics Under Action of Ultra-Short Laser Pulse*, J. Phys.: Conf. Ser. **774**, 012100 (2016).
35. N. A. Inogamov, Yu. V. Petrov, V. V. Zhakhovsky, V. A. Khokhlov, B. J. Demaske, S. I. Ashitkov, K. V. Khishchenko, K. P. Migdal, M. B. Agranat, S. I. Anisimov, and V. E. Fortov, *Two-Temperature Thermodynamic and Kinetic Properties of Transition Metals Irradiated by Femtosecond Lasers*, AIP Conf. Proc. **1464**, 593 (2012).
36. Yu. V. Petrov and N. A. Inogamov, *Elimination of the Mott Interband s-d Enhancement of the Electrical Resistance of Nickel and Platinum Owing to the Excitation of Electrons by Femtosecond Laser Pulses*, JETP Lett. **98**, 278 (2013).
37. А. В. Бушман и В. Е. Фортов, *Модели уравнения состояния вещества*, УФН, **140**, 177 (1983).
38. V. E. Fortov, K. V. Khishchenko, P. R. Levashov, and I. V. Lomonosov, *Wide-Range Multi-Phase Equations Of State for Metals*, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A **415**, 604 (1998).
39. A. V. Bushman, G. I. Kanel', A. L. Ni, and V. E. Fortov, *Intense Dynamic Loading of Condensed Matter*. Taylor & Francis, Washington, D.C. (1993).
40. K. V. Khishchenko, S. I. Tkachenko, P. R. Levashov, I. V. Lomonosov, and V. S. Vorobev, *Metastable States of Liquid Tungsten Under Subsecond Wire Explosion*, Int. J. Thermophys. **23**, 1359 (2002).
41. К. В. Хищенко, *Уравнение состояния магния в области высоких давлений*, Письма в Журнал технической физики **30**(19), 65 (2004).
42. I. V. Lomonosov, *Multi-Phase Equation Of State for Aluminum*, Laser and Particle Beams **25**, 567 (2007).
43. K. V. Khishchenko, *Equation Of State for Tungsten over a Wide Range of Densities and Internal Energies*, J. Phys.: Conf. Ser. **653**, 012081 (2015).
44. И. В. Ломоносов и С. В. Фортова, *Широкодиапазонные полуэмпирические уравнения состояния вещества для численного моделирования высокоэнергетических процессов*, ТВТ **55**, 596 (2017).
45. K. V. Khichshenko, *Equation Of State of Sodium for Modeling of Shock-Wave Processes at High Pressures*, Math. Montis. **40**, 140 (2017).
46. Yu. V. Petrov, N. A. Inogamov, and K. P. Migdal, *Thermal Conductivity and the Electron-Ion Heat Transfer Coefficient in Condensed Media with a Strongly Excited Electron Subsystem*, JETP Lett. **97**, 20 (2013).

47. Yu. V. Petrov, N. A. Inogamov, K. P. Migdal, A. V. Mokshin, and B. N. Galimzyanov, *Electron-Ion Energy Exchange in Simple Metals in Ziman Approach*, J. Phys.: Conf. Ser. **1556**, 012005 (2020).
48. Yu. V. Petrov, N. A. Inogamov, V. A. Khokhlov, and K. P. Migdal, *Electron Thermal Conductivity of Nickel and Aluminum in Solid and Liquid Phases in Two-Temperature States*, J. Phys.: Conf. Ser. **1787**, 012025 (2021).
49. Yu. V. Petrov, K. P. Migdal, N. A. Inogamov, and S. I. Anisimov, *Transfer Processes in a Metal With Hot Electrons Excited by a Laser Pulse*, JETP Lett. **104**, 431 (2016).
50. Yu. V. Petrov, K. P. Migdal, D. V. Knyazev, N. A. Inogamov, and P. R. Levashov, *Transport Properties of Copper With Excited Electron Subsystem*, J. Phys.: Conf. Ser. **774**, 012103 (2016).
51. K. P. Migdal, Yu. V. Petrov, D. K. Il'nitsky, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov, K. V. Khishchenko, D. V. Knyazev, and P. R. Levashov. *Heat Conductivity of Copper in Two-Temperature State*, Appl. Phys. A **122**, 408 (2016).
52. N. A. Inogamov, V. A. Khokhlov, V. V. Zhakhovsky, and Yu. V. Petrov, *Energy Redistribution Between Layers in Multi-Layered Target Heated by X-Ray Pulse*, J. Phys.: Conf. Ser. **946**, 012009 (2018).
53. Y. V. Petrov, N. A. Inogamov, A. V. Mokshin, and B. N. Galimzyanov, *Electrical Resistivity and Thermal Conductivity of Liquid Aluminum in the Two-Temperature State*, J. Phys: Conf. Ser. **946**, 012096 (2018).
54. Yu. Petrov, K. Migdal, N. Inogamov, V. Khokhlov, D. Ilnitsky, I. Milov, N. Medvedev, V. Lipp, and V. Zhakhovsky, *Ruthenium Under Ultrafast Laser Excitation: Model and Dataset for Equation Of State, Conductivity, and Electron-Ion Coupling*, Data in Brief **28**, 104980 (2020).
55. B. J. Demaske, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov, and I. I. Oleynik, *Ultrashort Shock Waves in Nickel Induced by Femtosecond Laser Pulses*, Phys. Rev. B **87**, 054109 (2013).
56. M. M. Budzevich, V. V. Zhakhovsky, C. T. White, and I. I. Oleynik, *Evolution of Shock-Induced Orientation-Dependent Metastable States in Crystalline Aluminum*, Phys. Rev. Lett. **109**, 125505 (2012).
57. V. Zhakhovsky, Yu. Kolobov, S. Ashitkov, N. Inogamov, I. Nelasov, S. Manokhin, V. Khokhlov, D. Ilnitsky, Yu. Petrov, A. Ovchinnikov, O. Chefonov, and D. Sitnikov, *Shock-Induced Melting and Crystallization in Titanium Irradiated by Ultrashort Laser Pulse*, Physics of Fluids **35**, 096104 (2023).
58. A. D. Raki, A. B. Djuricic, J. M. Elazar, and M. L. Majewski, *Optical Properties of Metallic Films for Vertical-Cavity Optoelectronic Devices*, Appl Opt. **37**, 5271 (1998).
59. E. Silaeva, L. Saddier, and J.-P. Colombier, *Drude-Lorentz Model for Optical Properties of Photoexcited Transition Metals Under Electron-Phonon Nonequilibrium*, Applied Sciences **11**, (2021).
60. Zh. Lin, L. V. Zhigilei, and V. Celli, *Electron-Phonon Coupling and Electron Heat Capacity of Metals Under Conditions of Strong Electron-Phonon Nonequilibrium*, Phys. Rev. B **77**, 075133 (2008).
61. Yu. V. Petrov and N. A. Inogamov, *Elimination of the Mott Interband s-d Enhancement of the Electrical Resistance of Nickel and Platinum Owing to the Excitation of Electrons by Femtosecond Laser Pulses*, JETP Lett. **98**, 278 (2013).
62. И. К. Кикоин, *Таблицы физических величин*. Москва: Атомиздат (1976).
63. <https://en.wikipedia.org/wiki/nickel>.
64. <https://dpva.ru/>.