Письма в ЖЭТФ, том 120, вып. 7, с. 550 – 559 

# Синхронное детектирование нелинейных явлений в оптоакустических осцилляциях нанопленки, инициированных фемтосекундным лазерным импульсом

*В. А. Хохлов*[+], *С. А. Ромашевский*[*], *С. И. Ашитков*[*], *Н. А. Иногамов*[+*×1)]

[+]*Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау РАН, 142432 Черноголовка, Россия*

[*]*Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия*

[×]*Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н. Л. Духова Росатом, 127055 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 16 июля 2024 г.
После переработки 27 августа 2024 г.
Принята к публикации 28 августа 2024 г.

Для развития микроэлектроники существенное значение имеют исследования физики индуцированных лазером сверхбыстрых процессов в тонких пленках. К таким процессам относятся: нагрев электронной подсистемы, релаксация и транспорт поглощенной энергии, а также генерация и распространение пикосекундных акустических волн. В этой связи в работе изучена динамика изменения дифференциального коэффициента отражения $\Delta R(t)/R_0$ пленки никеля (Ni) толщиной 73 нм на подложке из стекла. Измерения выполнены в схеме "возбуждение–зондирование" (pump-probe) с синхронным детектированием сигнала $\Delta R(t)/R_0$. За счет увеличения периода следования $t_{\mathrm{cool}}$ последовательности нагревающих (возбуждающих) импульсов достигнуты высокие значения поглощенного флюенса до 11 мДж/см$^2$. Увеличение $t_{\mathrm{cool}}$ позволяет лучше охлаждать пленку после нагревающего воздействия. В результате получены рекордные значения температур ($T_e \approx 3$, $T_i \approx 1$ кК) и напряжений (до 7 ГПа). В литературе отсутствуют данные при таких высоких температурах и давлениях. Именно при этих повышенных значениях удается заметить влияние нелинейных эффектов – впервые в опытах с синхронным детектированием.

DOI: 10.31857/S0370274X24100115, EDN: QFZKSG

**1. Введение.** Бесконтактные, неразрушающие оптические методы анализа тепловых и механических свойств с наномасштабным пространственным, а также фемто- и пикосекундным временным разрешением, необходимы для оптимизации характеристик тонких пленок на подложках. Такого рода материалы являются основой современной солнечной энергетики (фотовальтаика) и электронной промышленности (гетероструктуры, топологические изоляторы и устройства на их основе). Реализация подобных прецизионных измерений требует применения фемтосекундных лазеров и методов синхронного детектирования [1–6].

Важным аспектом сверхбыстрого нагрева материала с помощью фемтосекундных лазерных импульсов является генерация пикосекундных акустических импульсов (или когерентных акустических фононов) в гигагерцовом–терагерцовом частотном диапазонах [7, 8]. С помощью лазерно-индуцированных акустических импульсов возможно, например, обнаружить наличие скрытых интерфейсов и структур через оптически непрозрачные материалы (металлы) с микронным латеральным и наномасштабным разрешением по глубине [9, 10]. Для исследования оптически прозрачных сред с помощью акустических импульсов используют методику бриллюэновского рассеяния во временной области [11, 12], которая позволяет получить информацию об акустооптических свойствах исследуемого материала, наличии структурных неоднородностей с наноразмерным пространственным разрешением [13, 14].

Методика синхронного детектирования (СД) позволяет обнаружить искомый сигнал малой амплитуды на определенной частоте среди широкополосного шумового фона высокой амплитуды. Согласно данной методике определяется вариация во времени дифференциального коэффициента отражения $\Delta R(t)/R_0$ или пропускания $\Delta T(t)/T_0$ зондирующего лазерного импульса. Изменения коэффициентов $R, T$ связаны с внутренними переходными процессами в облученной мишени, которые индуцируют-

1)e-mail: nailinogamov@gmail.com

ся воздействием нагревающего импульса. Описание происходящего внутри мишени на базе методики СД по смыслу аналогично применению методики VISAR (Velocity interferometer system for any reflector) [15–17], но на совсем других пространственно-временных масштабах – пикосекунды вместо нано- и микросекунд. СД позволяет анализировать пикосекундную акустику.

Существенное значение данной работы состоит в том, что удалось применить высокоточную методику СД при повышенных значениях поглощенного мишенью флюенса $F_{abs}$. Т.е. продвинуться значительно дальше по диапазону температур и давлений в сторону их повышения по сравнению с современными литературными данными по данной широко применяемой методике. Слабый нагрев с помощью фемтосекундных лазерных импульсов и релаксация энергии в тонких пленках никеля изучались с помощью СД с целью выяснения динамики сверхбыстрого размагничивания [18]. См. также работы [6, 19], относящиеся к опто-магнето-акустике и магнетоплазмонике. По методике СД экспериментальные исследования фундаментальных законов взаимодействия электронной и фононной подсистем, а также экспериментальные исследования переноса тепла на наномасштабах [3, 20, 21] проводились лишь при малых перегревах электронной подсистемы.

Исследования динамики оптического отклика при высоких значениях $F_{abs}$ с помощью СД ранее проводили в работах [22, 23]. Это достигалось за счет удлинения промежутка времени $t_{\rm cool}$ между нагревающими лазерными импульсами, чтобы после нагрева мишень успела вернуться в состояние при комнатной температуре. Но в работах [22–24] усилия были сосредоточены на другом. Определялись параметр взаимодействия электронной и фононной подсистем $\alpha$ и теплопроводность $\kappa$ в золоте в двухтемпературных (2T) условиях.

В настоящей работе рассматриваются оптоакустические явления при повышенных флюенсах $F_{abs}$. Золото, изученное в статьях [23, 24], плохо подходит для анализа оптоакустики. Дело тут в следующем. В золоте мал коэффициент $\alpha$ и велика температуропроводность $\chi_{2T} = \kappa_{2T}/c_e$ в 2T условиях [25]; здесь $c_e$ – теплоемкость электронной подсистемы. В металлах 2T значения $\chi_{2T}$ могут на два порядка превосходить однотемпературные (1T, $T_e \approx T_i$) значения $\chi_{1T} = \kappa_{1T}/c \sim 0.2 - 1$ см$^2$/с [25], $c$ – это 1T теплоемкость. Для кристаллов с одним атомом на ячейку решетки $c \approx 3nk_B$ – закон Дюлонга–Пти. Электроны сильно вырождены, их вклад в теплоемкость мал по сравнению с $3nk_B$ при относительно невысоких электронных температурах $T_e$ вплоть до значений $\sim 1$ эВ при энергии Ферми металлов $\sim 10$ эВ. Простые пояснения этих обстоятельств описаны в статье [25]. Соответственно в золоте весьма продолжительна 2T стадия (ее длительность $t_{eq}$) и очень велика глубина прогрева $d_T \approx 2\sqrt{\chi_{2T} t_{eq}} \sim 150{-}200$ нм на 2T стадии. В течение 2T стадии тепловая волна уходит из скин-слоя со сверхзвуковой скоростью. Акустическая стадия следует после окончания 2T стадии и, соответственно, после прекращения сверхзвукового распространения тепла.

В данной работе мы исследовали нанопленку никеля на стеклянной подложке. Пленка ограничена границей с воздухом с одной стороны (это фронтальная граница) и контактом никель–стекло с другой стороны. В никеле параметр $\alpha$ велик по сравнению с золотом, длительность 2T стадии $t_{eq}$ мала, коэффициент $\chi_{2T}$ и глубина прогрева $d_T$ меньше, чем в золоте. Акустическая стадия начинается резче и раньше, чем в золоте. Поэтому наблюдается отчетливо с помощью методики СД [26]. Толщина слоя прогрева $d_T$ в никеле несколько превышает толщину скин-слоя $\delta_{sk} = 13$ и 12 нм для первой 793 нм и второй 396 нм гармоник соответственно [27].

Как известно, после окончания сверхзвуковой 2T стадии (квазигомогенного распространения поглощенной энергии вглубь по электронной подсистеме при практически неподвижном веществе) происходит распад профиля давления на две волны по Даламберу. Одна из этих волн (волна сжатия) сразу бежит в толщу пленки. Другая отражается от фронтальной границы (механически это свободная граница), меняет знак амплитуды и распространяется вслед за первой волной в виде волны разрежения. В результате в пленку бежит комбинация волны сжатия и разрежения, названная зет-профилем [28, 29] или зигзаг волной за свою форму. В линейной акустической аппроксимации между волнами сжатия и разрежения имеется резкий скачок. Как будет видно из экспериментальных и численных результатов, представленных ниже, в силу нелинейных эффектов происходит постепенное уменьшение крутизны скачка. В линейном случае эта крутизна всегда бесконечна.

**2. Эксперимент.** В качестве лазерного источника использовалась фемтосекундная лазерная система субтераваттного диапазона с регенеративным усилением чирпированных импульсов на кристалле титан-сапфира (Coherent, Legend). Система генерирует импульсы длительностью 60 фс на длине волны 793 нм с частотой повторения 1 кГц. В качестве образца использовалась поликристаллическая пленка никеля (Ni) толщиной $d_f = 73 \pm 2$ нм. Толщина измерена с помощью атомно-силового микроскопа Veeco Multimode 5. Шероховатость поверхности пленки (Ra) составляла 6 нм. Пленка нанесена на стеклянную боросиликатную подложку толщиной 150 мкм методом магнетронного распыления в аргоновой среде при давлении $5 \times 10^{-2}$ Торр.

Измерения временной динамики дифференциального коэффициента отражения

$$\Delta R(t)/R_0, \tag{1}$$

наведенного в исследуемом образце *нагревающим* импульсом, регистрировались с помощью *зондирующего* импульса в схеме "возбуждение–зондирование" с применением методики СД [26, 30]. Здесь $\Delta R(t) = R(t) - R_0$, $R(t)$ и $R_0$ – индуцированный и исходный коэффициенты отражения.

Нагревающий импульс после преобразования во вторую гармонику в кристалле BBO имел длительность $t_{\rm pump} = 150$ фс и длину волны $\lambda_{\rm pump} = 396$ нм. Нагревающий импульс фокусировался с помощью 200-мм линзы под углом падения 45° в эллиптическое пятно с размерами $d_x = 130$ и $d_y = 93$ мкм по уровню $1/e$. ё Изменения коэффициента (1) регистрировались в центре области нагрева с помощью зондирующих импульсов. Зондирующий импульс имел длительность $t_{\rm probe} = 60$ фс и длину волны $\lambda_{\rm probe} = 793$ нм. Этот импульс фокусировался с помощью микрообъектива 4X/0.10 по нормали к поверхности в пятно диаметром $d_x = d_y = 15$ мкм по уровню $1/e$.

Для изменения временной задержки $t_{\rm delay}$ между нагревающим и зондирующим импульсами использовалась оптическая линия задержки. Времена $t_{\rm delay}$ находятся в диапазоне от $-3$ до 300 пс. Дискретный шаг по времени $t_{\rm delay}$ менялся от 30 фс на ранней стадии до 400 фс на более поздних стадиях.

Малые изменения коэффициента отражения (1) с амплитудами $\sim 10^{-4}$–$10^{-2}$ величины регистрировались с использованием методики СД. Методика позволяет с помощью синхронного усилителя [26] измерять слабые периодические полезные сигналы на определенной (заданной) частоте на фоне шумов.

Сигналы зондирующего импульса, отраженного от образца и падающего на образец, регистрируются с помощью двух фотодиодов в балансном режиме и направляются на дифференциальный вход синхронного усилителя (SR830). В нашем варианте методики СД измеряется сигнал (1) на частоте следования нагревающих импульсов 500 Гц (после механического прерывателя), при этом частота следования зондирующих импульсов 1 кГц.

Процесс измерений был автоматизирован с применением программного обеспечения. Минимальные регистрируемые изменения сигнала (1) в примененной схеме составляли $\sim 5 \times 10^{-5}$.

Нагревание и измерения коэффициентов отражения зондирующего (1) и нагревающего $R_{\rm pump}$ импульсов осуществлялись с фронтальной поверхности пленки никеля. С учетом измеренного нами значения $R_{\rm pump} = 0.14$ поглощенный флюенс $F_{abs}$ нагревающего импульса варьировался в пределах от 0.906 до 10.87 мДж/см$^2$. Очень важно то, что это максимально возможный флюенс на частоте следования нагревающих импульсов 500 Гц. При этом все изменения в образце были обратимыми. Методики измерений (a) флуенса, падающего на мишень нагревающего импульса, (b) коэффициента отражения нагревающего импульса и (c) размера пятна фокусировки описаны в работе [24].

При более высоких значениях $F_{abs}$ теряется обратимость и происходит разрушение образца. Причем на сегодня не ясно, какой процесс из следующих двух доминирует при разрушении. С одной стороны, достаточно велики механические нагрузки на первых десятках пикосекунд (см. также [31]): силовые напряжения до 7 ГПа в пленке и $\sim 1$ ГПа в стекле для $F_{abs} = 10.87$ мДж/см$^2$. С другой стороны, в длинных сериях нагревающих импульсов происходит накопление температуры.

**3. Постепенный нагрев при многократных повторениях.** На промежутке времени $t_{\rm cool} = 2$ мс между последовательными нагревающими импульсами пленка остывает за счет теплоотвода. Оценка радиуса $r$ растекания тепла в стороны по пленке за время между нагревающими импульсами дает $r \sim 2\sqrt{\chi_{1T} t_{\rm cool}} = 440$ мкм; $\chi_{1T} \approx 0.2$ см$^2$/с. Отношение площадей нагрева и растекания около 20. Приращение температуры пленки в центре пятна нагрева после электрон-фононной релаксации и прогрева пленки по толщине составляет величину

$$\Delta T(F_{abs} = 10.87\,{\rm mJ/cm^2}) = 350\,{\rm K} \tag{2}$$

на временах $t \sim 100$ пс. Это данные численного моделирования.

За время $t_{\rm cool}$ под пятном нагрева пленки прогревается слой стекла $d_{\rm glass}$ толщиной более 60 мкм; $\chi_{\rm glass} \approx 5 \cdot 10^{-3}$ см$^2$/с. Толщина $d_{\rm glass}$ на три порядка больше толщины пленки $d_f$. Теплоемкости никеля и стекла суть $3.8 \cdot 10^6$ и $2.1 \cdot 10^6$ Дж/К/м$^3$. За счет прогрева стекла за время $t_{\rm cool}$ приращение температуры пленки снижается в 500 раз. Видим, что по сравнению с растеканием тепла по пленке прогрев стекла сильнее сказывается на охлаждении пленки. Снижение температуры определяется безразмерным отношением исходного и конечного (на момент $t_{\mathrm{cool}}$) объемов $20 \times 500 = 10^4$ – это произведение площади растекания тепла по пленке на глубину проникновения в подложку. В этих объемах сосредоточена диффундирующая в пространстве тепловая энергия. Причем по форме этот объем вытянут по площади – размер пятна прогрева по пленке 440 мкм, при этом глубина прогрева стекла 60 мкм, т.е. меньше в 7 раз.

Получается, что за время $t_{\mathrm{cool}}$ перед самым началом очередного импульса нагрева приращение температуры пленки снизится от значения (2) до значения

$$T^* = \Delta T(F_{abs} = 10.87\,\mathrm{mJ/cm^2})/10^4 = 0.04\,\mathrm{K}. \quad (3)$$

В эксперименте выполнялось три скана подряд, т.е. конец одного скана отделен от начала следующего скана тем же промежутком времени $t_{\mathrm{cool}}$. Внутри каждого из этих сканов измерения проводились для всех требуемых значений $t_{\mathrm{delay}}$. На каждое значение $t_{\mathrm{delay}}$ уходило примерно 175 нагревающих импульсов. В каждом скане выполнялись измерения для примерно 1100 значений $t_{\mathrm{delay}}$. Серия нагревающих воздействий в трех сканах состояла из $N \approx 6 \cdot 10^5$ воздействий. По времени это занимало около 20 минут.

Оценка роста температуры $\Delta T_{\mathrm{fin}}$ мишени за $N$ нагревающих импульсов имеет вид

$$\Delta T_{\mathrm{fin}} = \sqrt{N} T^*. \quad (4)$$

Такая оценка для указанного значения числа $N$ дает приращение (4), равное 30 К. Оценка (4) с величиной $T^*$ (3) выполнена в предположении бесконечного размера пленки и бесконечно толстого слоя стекла. Оценка основана на линейности уравнения теплопроводности, росте глубины прогрева $\propto \sqrt{t}$ и суммировании вкладов от последовательности нагревающих импульсов $\sum^{n=N} T^*/\sqrt{n}$.

Реальная оценка должна учитывать размеры и конфигурацию мишени. Дело в том, что тепло первых нагревающих импульсов растекается на значительные расстояния от пятна фокусировки, поскольку длительность опыта велика. Например, радиус распространения тепла по пленке за 20 мин составит 30 см. При $N = 6 \cdot 10^5$ и поглощенной энергии 1.2 мкДж за один нагревающий импульс, общая энергия, переданная в образец, составит 0.7 Дж. Пусть площадь пленки и подложки 1 см$^2$. Образец теплоизолирован. Тогда нагрев образца за три скана составит 20 К при однородном распределении температуры. Таким образом, значение (4) можно снижать за счет повышения эффективности теплоотвода от образца.

На рисунке 1 штриховая горизонтальная прямая отмечает исходный уровень коэффициента (1) нашей мишени из пленки и подложки. Для толстого образца никеля при нормальном падении на длине волны 793 нм имеем $R_0 = 0.74$. На короткой 2T стадии I на рис. 1 отражение образца увеличивается. Этой стадии соответствуют положительные значения поправки (1). Увеличение коэффициента $R$ обусловлено перераспределением электронов между $s$- и $d$-зонами никеля $3d^8 4s^2$ или $3d^9 4s^1$ [32]. Большой центробежный потенциал $3d$-зоны поднимает $3d$-электроны на уровень 4-й оболочки. Повышение коэффициента отражения на 2T стадии достаточно типично для металлов и длины волны $\lambda$, на которой коэффициент отражения низкий. Для хорошо отражающих металлов на 2T стадии отражение ухудшается [24].

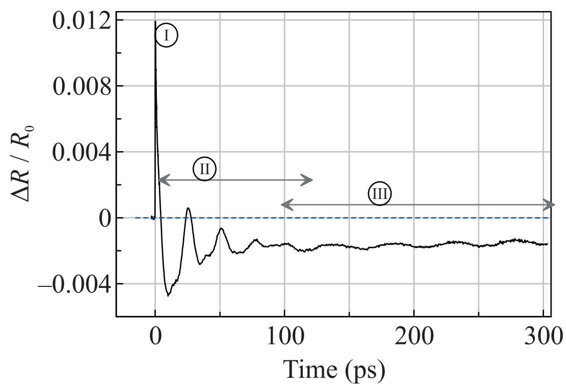


Рис. 1. (Цветной онлайн) Временная вариация коэффициента (1) при максимальном значении $F_{abs} = 10.87$ мДж/см$^2$ на частоте 500 Гц. Имеются три характерные стадии: I – 2T стадия продолжительностью $\sim 1$ пс; II – стадия доминирования акустического эха в пленке никеля; III – бриллюэновское рассеяние зондирующих импульсов на акустической волне, распространяющейся в стеклянной подложке

На 1T стадиях II и III, показанных на рис. 1, коэффициент (1) в основном отрицательный из-за нагрева пленки, снижения ее плотности и, соответственно, плазменной частоты. В данной работе ограничимся анализом акустических явлений на стадии II.

**4. Нелинейная лазерная гидродинамика.** Характер сильных нелинейных явлений стал ясен уже начиная с первых работ, описывающих взаимодействие ультракоротких импульсов с металлами [33, 34]. Это, во-первых, образование ударных волн [35, 36], во-вторых, отслоение пленок (деламинирование) [37, 38], реверберация в нагретом слое [39] и, в-третьих, разрыв конденсированной фазы (нанооткол, кавитация) [29, 33, 39–43] вследствие сильного растяжения. В работах [39, 41, 42] пикосекундные реверберации наблюдались в твердой фазе при отколе или в расплаве при фемтосекундной лазерной абляции.

Нанооткол разрушает мишень после однократного воздействия. Поэтому при применении методики синхронного детектирования (многократные воздействия) оперируют при гораздо более слабой энергетике нагревающих импульсов. При этом описание акустического поля ограничивают линейным приближением [1–4, 6].

Формирование течения в виде "зет-волны" после сверхзвукового нагрева металла электронной тепловой волной изучено [28, 29]. Как сказано, зет-профиль ABCD на рис. 2 появляется в результате (a) "мгновенного" (сверхзвук) образования слоя/профиля давления толщиной $d_T$ в неподвижном $u = 0$ (это важно) веществе, (b) распада созданного сверхзвуком профиля давления по Даламберу при $p > 0, u = 0$ и (c) отражения от границы с воздухом.

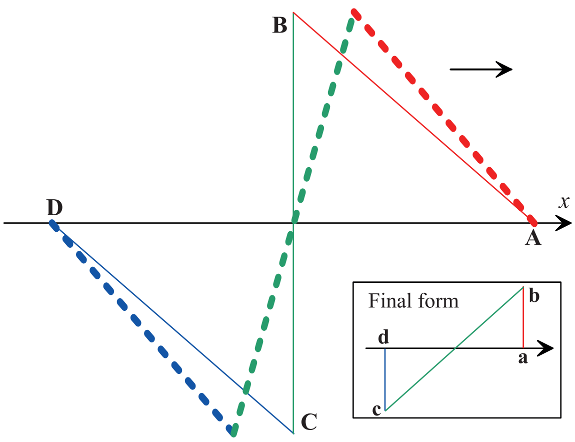


Рис. 2. (Цветной онлайн) Мгновенный профиль давления в акустической волне ABCD, сформированной фемтосекундным воздействием. Волна распространяется в направлении стрелки направо. Облученная фронтальная граница воздух/никель остается слева. В линейном приближении форма ABCD с вертикальным скачком BC остается неизменной. Искаженный за счет нелинейности профиль показан точками. Наклон скачка BC постепенно снижается. Асимптотически волна принимает вид abcd, показанный в прямоугольной вставке. Асимптотический профиль состоит из двух ударных волн ab и cd, и семейства характеристик bc

Зигзаг или зет-профиль ABCD на рис. 2 состоит из волны сжатия AB (красный отрезок) $p > 0$, бегущей впереди, и примыкающей к ней волны растяжения CD (синий отрезок) $p < 0$. Резкий скачок BC между этими двумя составляющими (зеленый отрезок) связан с условием отражения на фронтальной границе. Смена знака давления, а значит и скорости $u = p/z$, обусловлена законом сохранения импульса; здесь $z$ – акустический импеданс никеля. Импульсом поглощенных и отраженных фотонов можно пренебречь в отношении скоростей гидродинамического движения и скорости света. Треугольная форма на схеме на рис. 2 выбрана для простоты. Реальная форма складывается на 2T стадии. Она ближе к Гауссиану – решению уравнения теплопроводности.

В нелинейном случае форма ABCD на рис. 2 с течением времени меняется. В точках A и D волна распространяется со скоростью звука $c_0$, поскольку (a) вещество неподвижно и (b) давление в этих точках равно нулю. Однако на гребне (точка B) и впадине (точка C) волны ситуация другая. При учете нелинейности в первом порядке теории возмущений скорость гребня B на величину $\Delta v = (1/z + \partial c/\partial p)p$ больше, чем невозмущенная скорость $c_0$. Таким образом, точки B и C расходятся с течением времени со скоростью $2\Delta v$.

Первый признак нелинейности – это изменение наклона семейства характеристик BC, см. рис. 2. Нелинейная стадия 1 заканчивается опрокидыванием волн – синий и красный наклонные отрезки на рис. 2 трансформируются в ударные скачки ab и cd на прямоугольной вставке на рис. 2. На нелинейной стадии 2 амплитуда скачков ab и cd снижается пропорционально $1/\sqrt{t}$, см. [44]. Это происходит за счет поглощения характеристик семейства bc в ударных волнах ab и cd. Мгновенная амплитуда скачка определяется давлением $p$ на характеристике, входящей в этот момент в скачок. В скачок входят характеристики со все меньшими и меньшими значениями $p$. Соответственно амплитуда скачка снижается. Наши опыты при наивысших для техники синхронного детектирования флюенсах $F_{abs}$ и численные расчеты впервые для указанной техники обнаруживают развитие оптоакустических процессов на нелинейной стадии 1.

**5. Численное моделирование и сравнение с опытами.** Как и в методе VISAR [15, 17], измерения коэффициента (1) [1] связаны с сигналом от границы мишени, внутри которой протекают переходные процессы. Проведем анализ процессов внутри мишени с помощью 2T гидродинамического моделирования (2T-гд код [45]) в приближении изотропного упругого тела. На рисунке 3 более подробно представлена стадия II с рис. 1. Вертикалями $t = \text{const}$ отмечены моменты времени, в которые мы смотрим на происходящее в толще мишени. Синие вертикали относятся к рис. 4. Рисунок 4 поясняет структуру акустического поля внутри пленки никеля. Красные вертикали связаны с рис. 5. Они требуются для того, чтобы понимать физику формирования акустического всплеска. Длина красной горизонтальной черточки над первым всплеском соответствует времени циркуляции характеристик BC через скин-слой, см. рис. 5. Зеленые метки на рис. 3 относятся к волне разрежения RW (rarefaction wave).

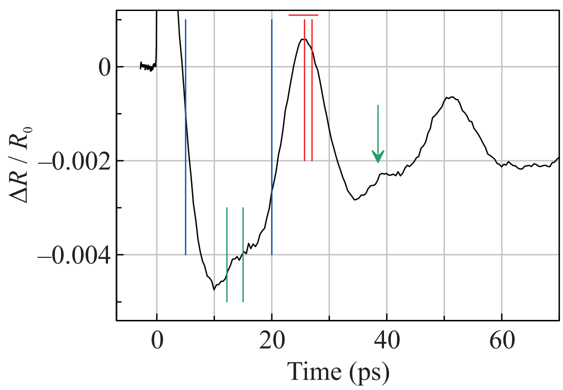


Рис. 3. (Цветной онлайн) Показаны два первых акустических пика зависимости (1) с рис. 1. Зелеными двумя вертикалями отмечен 1-й приход волны разрежения RW на фронтальную границу fr, см. рис. 6. Зеленая стрелка отмечает 2-й приход волны RW на границу fr. См. текст

Нагревающий импульс порождает в мишени акустическую волну вида, показанного на рис. 2. Но на рис. 2 $z$-профиль распространяется в неограниченном объеме. В нашей ситуации с достаточно тонкой пленкой 73 нм, сопоставимой по толщине со слоем "мгновенного" 2T прогрева $d_T$, необходимо учитывать наличие контакта никель-стекло.

Толщина прогрева $d_T$ в никеле на используемой для нагрева длине волны 396 нм и при поглощенном флюенсе 10.87 мДж/см$^2$ составляет примерно 30 нм. При $F_{abs} = 0.906$ мДж/см$^2$ величина $d_T \approx 20$ нм. Толщина $d_T$ определена посредством 2T гидродинамического численного моделирования по полувысоте приращения мгновенного профиля электронной температуры $T_e(x, t^*)$ по сравнению с комнатным значением температуры в момент $t^*$ достижения максимального значения температуры $T_e$ на фронтальной (т.е. облучаемой) поверхности.

Сверхзвуковая электронная тепловая волна быстро (мгновенно для акустических масштабов времени) поднимает давление на контакте со стороны никеля. Акустический импеданс стекла в разы меньше импеданса никеля. Поэтому "мгновенно" от контакта начинает распространяться в толщу пленки никеля волна разрежения RW – это следствие быстрого "включения" давления в никеле на контакте.

Таким образом, в пленке распространяются две особенности звукового поля – см. рис. 4. Это, во-первых, скачок BC (см. рис. 2, 4) и, во-вторых, волна разрежения RW, идущая от контакта, см. рис. 4. На акустических масштабах времени они стартуют в нулевой момент времени внутрь пленки одна от фронтальной границы, а другая, как сказано, от контакта – т.е. навстречу друг другу. Всплески на зависимости (1) на рис. 1 и 3 связаны с приходом этих особенностей в скин-слой для зондирующих импульсов; и нагревающий, и зондирующий импульсы освещают пленку с фронтальной стороны; скин прилегает к фронтальной границе. Приход этих особенностей обуславливает быстрое изменение плотности и, следовательно, плазменной частоты $\omega_p$. Повышение плотности никеля в скин-слое увеличивает коэффициент отражения (1).

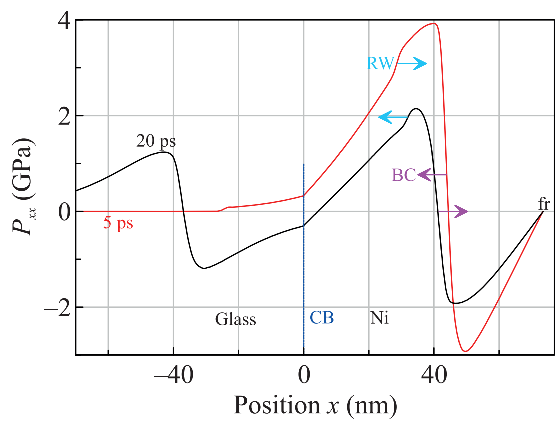


Рис. 4. (Цветной онлайн) Акустическое поле, получающееся сложением волны ABCD (см. рис. 2) и волны разрежения RW. Отмечены особенность BC волны ABCD (малиновые стрелки) и волна RW (голубые стрелки). Показаны первый (красный профиль) и второй (черный профиль) полупериоды длительностью ≈ 13 пс каждый. На 1-м полупериоде особенности BC и RW бегут от фронтальной границы (fr) и контакта (CB – contact boundary) соответственно. На 2-м полупериоде произошли первые отражения этих волн и направления распространения меняются на обратные. Смещения границ fr и CB менее 1 нм, и в приведенном масштабе незаметны. Крутизна волны RW определяется длительностью нарастания давления в никеле на контакте на 2T стадии.

По рисунку 5 можно судить по размаху изменения плотности в скин-слое при отражении семейства характеристик BC. Отметим, что хотя указанный размах изменения достаточно велик (1.4 %), изменение плотности на самой фронтальной границе мало, см. рис. 6. Гидродинамика применима на масштабах порядка нескольких межатомных слоев. У границы в этом пограничном слое выполняется динамическое граничное условие $p_{xx}|_{fr} = 0$. Этим условием обусловлена малость вариации $\rho|_{fr}$ на границе. Значения плотности никеля ниже его исходной плотности $\rho_0 = 8.907$ г/см$^3$. Это обусловлено нагревом пленки. Поэтому относительное изменение плотности $(\rho - \rho_0)/\rho_0$ на рис. 5, 6 является отрицательным.

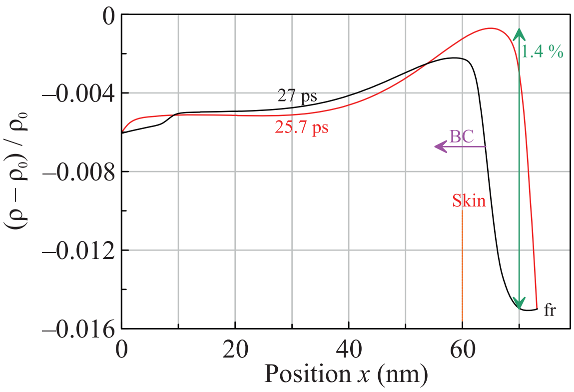


Рис. 5. (Цветной онлайн) Отражение семейства характеристик BC волны ABCD (см. рис. 2 и рис. 4) от фронтальной границы fr. На черном профиле характеристики BC уже отразились и двигаются налево. Прохождение участка BC туда и обратно через скин-слой толщиной 13 нм занимает 5 пс. Этот отрезок времени показан на рис. 3 в виде горизонтальной красной черточки над 1-м акустическим всплеском (1-е эхо скачка BC). Моменты времени 25.7 и 27 пс представлены на рис. 3 вертикальными красными прямыми. О толщине скина 13 нм можно судить по вертикальной прямой, показанной здесь короткими оранжевыми штрихам

**6. Связь гидродинамики и коэффициента отражения.** Представим диэлектрическую проницаемость никеля с помощью формулы Друде

$$e_1 = 1 - \frac{\omega_p^2(1+\hat{\rho})}{\omega^2}, \quad e_2 = \frac{\omega_p^2(1+\hat{\rho})}{\omega^2\,(\omega\tau(1+\hat{\tau}))}. \qquad (5)$$

Здесь $\omega = 2.4 \cdot 10^{15}$ рад/с – частота световых осцилляций на длине волны $\lambda = 793$ нм. Безразмерные поправки по плотности и времени столкновений обозначены $\hat{\rho} = (\rho - \rho_0)/\rho_0$ и $\hat{\tau}$. Определим плазменную частоту $\omega_p = 10.6 \cdot 10^{15}$ рад/с и время свободного пробега $\tau = 0.39$ фс по диэлектрической постоянной никеля $e_1 = -18.8$, $e_2 = 21.45$. Значения $e$ взяты из справочника для $\lambda = 793$ нм при комнатных условиях. При этом поправки, определяющие отклонение от этих условий, равны нулю.

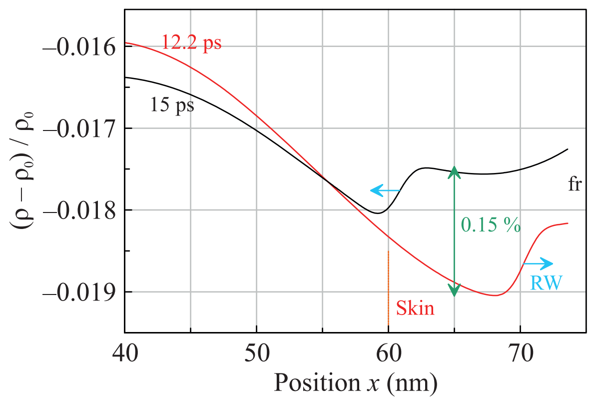


Рис. 6. (Цветной онлайн) Отражение волны разрежения RW (см. рис. 4) от фронтальной границы fr. На красном (черном профиле) волна движется направо к границе fr (налево от границы fr). Моменты времени 12.2 и 15 пс представлены на рис. 3 вертикальными зелеными прямыми. Скин-слой выделен надписью skin

Вычислим по функциям (5) коэффициент отражения $R(\hat{\rho}, \hat{\tau})$ с учетом поправок. Потом разложим вычисленную функцию $R$ по малым поправкам $\ll 1$. В линейном приближении получим

$$R = 0.74 + 0.11\hat{\rho} + 0.064\hat{\tau}. \qquad (6)$$

Как видим, увеличение плотности (а значит $\omega_p$) и времени пробега увеличивают коэффициент $R$ (6). Так и должно быть.

Возьмем поправку $\hat{\rho} = 0.014$ и среднее понижение относительной плотности $\hat{\rho} = -0.008$ с рис. 5. Пусть $\hat{\tau} = 0$. Тогда, согласно (6), поправка и среднее понижение величины (1) равны $0.11 * 0.014/0.74 = 2.1 \cdot 10^{-3}$ и $\approx -10^{-3}$. Видим, эти значения неплохо согласуется с зависимостью (1) на рис. 3.

Величина (1), изменение которой инициируется нагревающим воздействием, называют transient thermoreflectance (TTR) [1]. Действительно, нагрев нагревающим импульсом формирует акустическую волну (см. п. 4) и понижает плотность пленки (упомянутое выше $\hat{\rho} = -0.008$ и $\Delta R/R_0 \approx -0.001$). С другой стороны, появление акустического эха связано именно с силовыми напряжениями.

**7. Нелинейное уширение характеристик BC.** Изменение наклона и, соответственно, уширение участка характеристик BC в качественном отношении описано выше на рис. 2. На рисунке 7 количественно сравниваются ситуации со слабым (нелинейностью на рассматриваемых временах можно пренебречь) $F_{abs} = 0.906$ мДж/см$^2$ и более сильным (нелинейность существенна) $F_{abs} = 10.87$ мДж/см$^2$ нагревающими воздействиями. Они относятся к энергиям нагревающего импульса 0.1 и 1.2 мкДж. Разница в 12 раз. Показан момент $t = 20$ пс, относящийся ко 2-му полупериоду. Характеристики BC и волна RW один раз отразились от границ. Видим, что участок BC мгновенного профиля более сильного импульса наклонился сильнее. Соответственно максимум плотности и частоты $\omega_p$ придет на границу fr позже. Это проявится в задержке прибытия максимума пика, см. рис. 8 – П-образная метка.

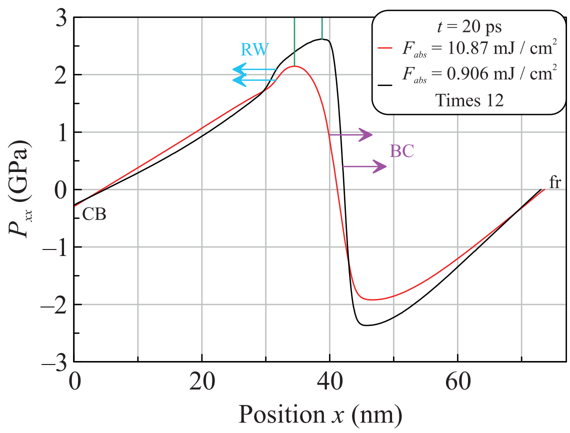


Рис. 7. (Цветной онлайн) Иллюстрация усиления нелинейного явления при увеличении энергии. Нелинейность проявляется в наклоне участка BC. Видим, что из-за наклона максимум $\rho$ в более сильной волне отстает от более слабой. Максимумы движутся вправо. Отставание показано зелеными вертикалями. Отставание приводит к сдвигу максимума акустического пика, отмеченного П-образной меткой на рис. 8. Амплитуда слабой волны увеличена в $12 = 1.2/0.1$ раз, чтобы сравнить слабое и сильное воздействия, см. текст

На рисунке 8 представлен экспериментально обнаруженный нелинейный эффект. Для сопоставления сигналов (1) с разными значениями $F_{abs}$, слабый сигнал увеличен в отношение энергий раз (в 12 раз). Погрешность, показанная на рис. 8 для синей кривой, не масштабировалась в 12 раз. Погрешности красной кривой такой же величины. Они не показаны, чтобы не загромождать рисунок. Поэтому чем слабее воздействие, тем более шумным оказывается сигнал (1).

**Заключение.** Проанализированы оптоакустические явления в тонкопленочной структуре. В опытах применен высокоточный метод синхронного детектирования (СД) и 2T численное моделирование с учетом упругости никеля. Насколько нам известно, анализ процесса выхода волны разрежения RW на фронтальную границу fr ранее не проводился. Волна RW инициируется на короткой 2T стадии на контакте никель–стекло.

Метод синхронного детектирования применен

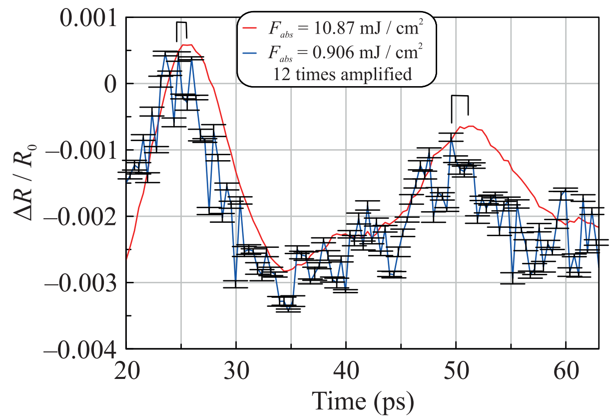


Рис. 8. (Цветной онлайн) Проявление нелинейности заключается в обнаруженной нами задержке акустических пиков при более сильных нагревающих воздействиях (красная кривая) по сравнению со слабыми воздействиями (синяя зависимость с указанием погрешности). Соответствующие задержки для 1-го и 2-го эха указаны П-образными метками

при предельной для этого метода энергетике. Описано накопление тепла при многократных повторениях нагревающих воздействий. Обсуждается, чем определяется предел применимости метода – постепенный нагрев или растрескивание при термоциклировании или их комбинация. При этом точность набора статистики измерений (1) определяется нагревом, а разрушение образца до его плавления формированием сети микротрещин (см. [31]).

Впервые обнаружены проявления нелинейности в методе СД, широко применяемом в опытах с лазерами. Предыдущие работы по этой важной тематике использовали линейное акустическое приближение.

Наш подход с повышением энергии в опытах с СД указывает путь к созданию комбинированных методик измерения оптических свойств в широком диапазоне энергий. При слабой энергетике применяется СД (многократные воздействия), которое непрерывно переходит в методику однократных измерений [29, 35] при большой энергии лазерного импульса.

**Финансирование работы.** Эксперимент поддержан Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (Соглашение с Объединенным институтом высоких температур Российской академии наук # 075-00270-24-00). Расчеты выполнены в рамках Госзадания Института теоретической физики им. Ландау Российской академии наук (FFWR-2024-0013). Эксперименты выполнены на оборудовании Центра коллективного пользования “Лазерный фемтосекундный комплекс”

(ЦКП ЛФК) Объединенного института высоких температур Российской академии наук (ОИВТ РАН).

**Конфликт интересов.** Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

---

1. Carolyn A. Paddock and Gary L. Eesley, J. Appl. Phys. **60**(1), 285 (1986).
2. C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc, Phys. Rev. B **34**, 4129 (1986).
3. S.-S. Wellershoff, J. Hohlfeld, J. Guedde, and E. Matthias, Appl. Phys. A **69** (Suppl 1), S99 (1999).
4. N. Del Fatti, C. Voisin, M. Achermann, S. Tzortzakis, D. Christofilos, and F. Vallée, Phys. Rev. B **61**, 16956 (2000).
5. А. А. Мельников, О. В. Мисочко, С. В. Чекалин, Письмв в ЖЭТФ **89** 148 (2009).
6. I. Razdolski, D. Makarov, O. G. Schmidt, A. Kirilyuk, T. Rasing, and V. V. Temnov, ACS Photonics **3**(2), 179 (2016).
7. O. Matsuda, M. C. Larciprete, R. Li Voti, and O. B. Wright, Ultrasonics **56**, 3 (2015).
8. C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H. J. Maris, J. Tauc, and J. J. Hauser, Phys. Rev. Lett. **53**, 989 (1984).
9. S. Edward, H. Zhang, I. Setija, V. Verrina, A. Antoncecchi, S. Witte, and P. Planken, Phys. Rev. Appl. **14**, 014015 (2020).
10. H. Zhang, A. Antoncecchi, S. Edward, I. Setija, P. Planken, and S. Witte, Phys. Rev. Appl. **13**, 014010 (2020).
11. C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc, Opt. Commun. **60**(1), 55 (1986).
12. V. E. Gusev and P. Ruello, Appl. Phys. Rev. **5**(3), 031101 (2018).
13. A. Devos and R. Côte, Phys. Rev. B **70**, 125208 (2004).
14. J. D. G. Greener, E. de Lima Savi, A. V. Akimov, S. Raetz, Z. Kudrynskyi, Z. D. Kovalyuk, N. Chigarev, A. Kent, A. Patané, and V. Gusev, ACS Nano **13**(10), 11530 (2019).
15. L. M. Barker and R. E. Hollenbach, J. Appl. Phys. **43**(11), 4669 (1972).
16. G. I. Kanel, S. V. Razorenov, and V. E. Fortov, *Shock-Wave Phenomena and the Properties of Condensed Matter*, Springer-Verlag New York, Inc. (2004).
17. E. B. Zaretsky and G. I. Kanel, J. Appl. Phys. **110**(7), 073502 (2011).
18. P. Tengdin, W. You, C. Chen, X. Shi, D. Zusin, Y. Zhang, C. Gentry, A. Blonsky, M. Keller, P. M. Oppeneer, H. C. Kapteyn, Zh. Tao, and M. M. Murnane. Sci. Adv. **4** 1 (2018).
19. V. V. Temnov, I. Razdolski, T. Pezeril, D. Makarov, D. Seletskiy, A. Melnikov, and K. A. Nelson, J. Opt. **18**(9), 093002 (2016).
20. J. M. Klopf A. P. Caffrey, P. E. Hopkins, and P. M. Norris, Microscale Thermophysical Engineering **9**(4), 365 (2005).
21. P. E. Hopkins, J. M. Klopf, and P. M. Norris, Appl. Opt. **46**(11), 2076 (2007).
22. S. I. Ashitkov, N. A. Inogamov, P. S. Komarov, Yu. V. Petrov, S. A. Romashevskiy, D. S. Sitnikov, E. V. Struleva, and V. A. Khokhlov, High Temperature **60**(2), 192 (2022).
23. N. A. Inogamov, V. A. Khokhlov, S. A. Romashevskiy, Yu. V. Petrov, V. V. Zhakhovsky, and S. I. Ashitkov, JETP Lett. **117**, 104 (2023).
24. Н. А. Иногамов, В. А. Хохлов, С. А. Ромашевский, Ю. В. Петров, М. А. Овчинников, С. И. Ашитков, ЖЭТФ **165**(2), 165 (2024).
25. 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, Contrib. Plasma Phys. **51**(4), 367 (2011).
26. D. P. Blair and P. H. Sydenham, J. Phys. E. **8**(8), 621 (1975).
27. M. Ȧ. Ordal, R. J. Bell, R. W. Alexander, L. L. Long, and M. R. Querry, Appl. Opt. **26**(4), 744 (1987).
28. V. E. Gusev and A. A. Karabutov, *Laser Optoacoustics*, AIP press, American Institute of Physics, N.Y. (1993).
29. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, S. I. Ashitkov, Yu. V. Petrov, M. B. Agranat, S. I. Anisimov, K. Nishihara, and V. E. Fortov, JETP **107**(1), 1 (2008).
30. H. Kempf, P. Sulzer, A. Liehl, A. Leitenstorfer, and R. Tenne, Commun Phys. **6**, 145 (2023).
31. F. Akhmetov, I. Milov, S. Semin, F. Formisano, N. Medvedev, J. M. Sturm, V. V. Zhakhovsky, I. A. Makhotkin, A. Kimel, and M. Ackermann, Vacuum, **212** 112045 (2023).
32. Yu. V. Petrov and N. A. Inogamov, JETP Lett. **98**(5), 278 (2013).
33. N. A. Inogamov, Yu. V. Petrov, S. I. Anisimov, A. M. Oparin, N. V. Shaposhnikov, D. von der Linde, and J. Meyer-ter Vehn, JETP Lett. **69**, 310 (1999).
34. С. И. Анисимов, Н. А. Иногамов, А. М. Опарин, Известия АН, Механика жидкости и газа **6**, 149 (1999).
35. S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, G. I. Kanel', P. S. Komarov, and V. E. Fortov, JETP Lett. **92**(8), 516 (2010).
36. V. V. Zhakhovskii and N. A. Inogamov, JETP Lett. **92**(8), 521 (2010).
37. X. W. Wang, A. A. Kuchmizhak, X. Li, S. Juodkazis, O. B. Vitrik, Yu. N. Kulchin, V. V. Zhakhovsky, P. A. Danilov, A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, A. A. Rudenko, and N. A. Inogamov, Phys. Rev. Appl. **8**(4), 044016 (2017).
38. S. A. Romashevskiy, V. A. Khokhlov, S. I. Ashitkov, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov, P. S. Komarov, A. N. Parshikov, Yu. V. Petrov, E. V. Struleva, and P. A. Tsygankov, JETP Lett. **113**, 308 (2021).

39. A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, L. V. Seleznev, and D. V. Sinitsyn, JETP Lett. **94**, 753 (2012).
40. V. V. Zhakhovskii, K. Nishihara, S. I. Anisimov, and N. A. Inogamov, JETP Lett. **71**(4), 167 (2000).
41. A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, L. V. Seleznev, D. V. Sinitsyn, V. N. Lednev, and S. M. Pershin, JETP **121**, 737 (2015).
42. A. A. Ionin and S. I. Kudryashov, JETP Lett. **104**, 573 (2016).
43. S. I. Kudryashov and A. A. Ionin,Int. J. Heat Mass Transf. **99**, 383 (2016).
44. V. V. Shepelev, Yu. V. Petrov, N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, E. A. Perov, and S. V. Fortova, Optics and Laser Technology **152**, 108100 (2022).
45. S. I. Anisimov, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov, K. P. Migdal, Yu. V. Petrov, and V. A. Khokhlov, JETP **129**(4), 757 (2019).