

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ АКУСТИЧЕСКИХ КОЛЕБАНИЙ В ТОНКИХ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНКАХ

О. Г. РОМАНОВ¹⁾, Я. К. ШТЫКОВ¹⁾

¹⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Республика Беларусь

Представлены результаты численного моделирования процессов лазерного нагрева и возбуждения акустических импульсов в металлических наноструктурах (тонких пленках). Нагрев металлов описывается в рамках двухтемпературной модели для электронного газа и ионной решетки. Пространственно-временная динамика возбуждения и распространения акустических колебаний исследуется на основе численного решения уравнений движения сплошных сред в форме Лагранжа. Показано, что нагрев тонких металлических пленок под действием сверхкоротких лазерных импульсов приводит к возбуждению их термоупругих колебаний, частота которых определяется линейными размерами поглощающей структуры и скоростью распространения звука в материале.

Ключевые слова: тонкие металлические пленки; сверхкороткие лазерные импульсы; наноакустика; двухтемпературная модель; уравнения движения сплошных сред в форме Лагранжа.

MODELING OF LASER-INDUCED EXCITATION OF ACOUSTIC VIBRATIONS IN THIN METALLIC FILMS

O. G. ROMANOV^a, Y. K. SHTYKOV^a

^aBelarusian State University, Nezavisimosti avenue, 4, 220030, Minsk, Republic of Belarus

The results of numerical modeling for excitation of ultrafast vibrations in layered metallic nanostructures due to absorption of ultrashort laser pulses are presented. Heating of metal is described in terms of a two-temperature model for the electron gas and ionic lattice. The spatiotemporal excitation and propagation dynamics of acoustic waves is investigated by numerically solving the Lagrangian-form motion equations for continuous media. It is shown that heating of metallic layers under the action of femtosecond laser pulses causes excitation of the thermoelastic vibrations the frequencies of which are determined by the thickness of metallic layers and by the speed of sound within the material.

Key words: thin metallic films; ultrafast laser pulses; nanoacoustics; two-temperature model; Lagrange equations.

Развитие техники пико- и фемтосекундных лазеров открыло широкие возможности исследования физических процессов, протекающих в наноструктурах на сверхкоротких временных масштабах. Методами спектроскопии пробного пучка было экспериментально установлено, что нагрев металлических наночастиц различной геометрии или тонких пленок под действием фемтосекундных лазерных импульсов приводит к возбуждению их термоупругих колебаний [1–5], частоты которых определяются

Образец цитирования:

Романов О. Г., Штыков Я. К. Моделирование процессов лазерно-индуцированного возбуждения акустических колебаний в тонких металлических пленках // Вестн. БГУ. Сер. 1, Физика. Математика. Информатика. 2016. № 2. С. 26–31.

For citation:

Romanov O. G., Shtykov Y. K. Modeling of laser-induced excitation of acoustic vibrations in thin metallic films. *Vestnik BGU. Ser. 1, Fiz. Mat. Inform.* 2016. No. 2. P. 26–31 (in Russ.).

Авторы:

Олег Геннадьевич Романов – кандидат физико-математических наук, доцент; заведующий кафедрой компьютерного моделирования физического факультета.

Яков Константинович Штыков – студент физического факультета.

Authors:

Oleg Romanov, PhD (physics and mathematics), docent; head of the department of computer modeling, faculty of physics.

romanov@bsu.by

Yakov Shtykov, student at the faculty of physics.

yshtykov@yandex.by

размерами поглощающей структуры и скоростью распространения звука в материале. Так, при линейных размерах наноструктур до 100 нм и типичных значениях скорости звука в металлах частоты возбуждаемых акустических колебаний лежат в диапазоне 100 ГГц – 1 ТГц. Распространение таких акустических импульсов через слоистые наноструктуры (фотонные, фононные кристаллы) индуцирует когерентные изменения толщины слоев с терагерцовой частотой, что может быть использовано для разработки новых сверхбыстрых устройств нанофотоники [6] и наноакустики [7]. Отдельный интерес представляют исследования пространственно-временной эволюции солитонных акустических импульсов и их высокочастотных последовательностей в кристаллах [8].

При теоретическом исследовании возникающих механических деформаций наночастиц и наноструктур в большинстве работ используется простая модель гармонического осциллятора [1, 5], которая, однако, позволяет дать лишь качественное описание происходящих процессов. Развиваются также подходы к моделированию деформационных колебаний наночастиц методом молекулярной динамики [9].

В настоящей работе задача о возбуждении акустических импульсов при поглощении энергии сверхкоротких лазерных импульсов в слоистых металлических наноструктурах (тонких пленках) рассматривается в рамках механики сплошных сред. Процессы, протекающие в сплошной среде при действии на нее лазерного излучения, могут быть описаны уравнениями движения среды в форме Эйлера или Лагранжа [10]. Здесь используются уравнения движения сплошных сред в форме Лагранжа, поскольку такой подход позволяет описывать движение неоднородных сред, свойства которых меняются при переходе через поверхности раздела. При этом нагрев металлов будем описывать в рамках двухтемпературной модели для электронного газа и ионной решетки [11].

Теоретическая модель

Будем рассматривать задачу о нагреве под действием сверхкороткого лазерного импульса тонкой металлической пленки, нанесенной на поверхность диэлектрической подложки. Нагрев металлов под действием коротких лазерных импульсов исследуется в рамках двухтемпературной модели для электронного газа и ионной решетки [11]:

$$\rho_e C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = k_T^e \frac{\partial^2 T_e}{\partial r^2} + Q_s - \gamma(T_e - T_i); \quad (1)$$

$$\rho_i C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = \gamma(T_e - T_i), \quad (2)$$

где величины ρ (плотность), C (теплоемкость), T (температура), k_T (коэффициент теплопроводности) с индексом «e» относятся к электронной подсистеме, с индексом «i» – к ионной; параметр γ определяет скорость релаксации энергии от электронного газа к ионам кристаллической решетки. Величина $Q_s = I(r, t)\kappa$ в уравнении (1) определяется источником энергоснабжения, где $I(t, r) = I_0 f_t(t) f_r(r)$ – интенсивность светового пучка; κ – коэффициент поглощения металла.

Уравнения Лагранжа для плоского движения сплошной среды имеют вид [10]

$$V = V_0 \frac{\partial R}{\partial r}; \quad (3)$$

$$\frac{\partial u}{\partial t} = -V_0 \frac{\partial P}{\partial r}; \quad (4)$$

$$\frac{\partial R}{\partial t} = u, \quad (5)$$

где R, r – эйлерова и лагранжева координаты соответственно; t – время; P – давление; $V_0 = \frac{1}{\rho_0}$, $V = \frac{1}{\rho}$ – начальный и текущий удельные объемы соответственно; ρ_0, ρ – соответствующие плотности.

Для аппроксимации уравнения состояния металлической пленки будем использовать уравнение Ми – Грюнайзена [12], которое с учетом выделения двух подсистем (электронной и ионной) принимает вид [13]

$$P = \rho_{i0} u_0^2 \left(1 - \frac{V_i}{V_0} \right) + \Gamma_i \frac{C_i (T_i - T_0)}{V_i} + \Gamma_e \frac{C_e (T_e - T_0)}{V_e}, \quad (6)$$

где $\Gamma_{i,e}$ – коэффициенты Грюнайзена; u_0 – скорость звука в металле. В качестве уравнения состояния окружающей среды также использовалось уравнение Ми – Грюнайзена в его двучленном виде:

$$P = \rho_0 u_l^2 \left(1 - \frac{V}{V_0} \right) + \Gamma \frac{C(T - T_0)}{V}, \quad (7)$$

где Γ – коэффициент Грюнайзена; u_l – скорость звука в окружающей среде.

Совместное решение системы уравнений (1) – (7) позволяет рассчитать пространственно-временные зависимости давления, температуры, плотности и скорости движения как в металлической наноструктуре, так и в окружающей ее среде. Численное моделирование проводилось с использованием методики конечно-разностной аппроксимации уравнений движения [14]. При реализации численного метода расчетная область разбивалась на ячейки размером $\Delta r = 0,05$ нм. Шаг по времени определялся

критерием Куранта $\Delta t = \frac{k \Delta r}{u_0}$, где коэффициент $k = 0,1 \dots 0,01$. Уравнение движения (4) аппроксимиро-

валось с учетом введения псевдовязкости, что позволяло стабилизировать численное решение в области существования скачков давления. При постановке граничных условий полагалось, что граница $r = 0$ является свободной и, соответственно, давление $P(r = 0, t) = 0$. Конечно-разностная аппроксимация уравнения теплопроводности проводилась на трехслойном явном шаблоне [15].

Результаты моделирования и их обсуждение

В экспериментах по возбуждению сверхвысокочастотных акустических импульсов под действием, как правило, фемтосекундных лазерных импульсов используются варианты металлических покрытий различных подложек: Al/GaAs [7, 8], Ti/Si [16], Cr/Al₂O₃ [8], Au/ITO [4], Au/GaAs [17] и др. Толщина металлической пленки обычно составляет 10–40 нм. Кроме того, сама подложка может представлять собой многослойную структуру типа фотонный [6], фононный [7] кристалл или многослойный метаматериал [18]. Будем рассматривать два типа структуры: Al/GaAs и Au/GaAs. Такой выбор обусловлен принципиальным различием в акустических свойствах рассматриваемых материалов и позволяет продемонстрировать существенную вариабельность характеристик возбуждаемых акустических импульсов.

В качестве первого примера рассмотрим воздействие лазерного импульса (интенсивность $I_0 = 10^8$ Вт/см², длительность $\tau_p = 10^{-13}$ с) на нанослой алюминия толщиной $L = 10$ нм, коэффициент поглощения которого полагаем $\kappa = 10^5$ см⁻¹, нанесенного на поверхность кристалла GaAs. Расчеты были проведены для типичных теплофизических параметров Al и GaAs. При решении тепловой задачи все параметры материалов считались постоянными без учета их температурной зависимости [19], так как расчеты проводились при низких значениях энергии лазерных импульсов.

Проведенные численные эксперименты показывают, что поглощение энергии сверхкороткого лазерного импульса электронами проводимости приводит к росту температуры электронного газа за время около 100 фс (рис. 1, а, 1) с последующей передачей энергии ионам кристаллической решетки и ее нагревом (см. рис. 1, а, 2). Выравнивание электронной и ионной температур происходит за время τ_{e-ph} , составляющее около 10 пс, что является типичной величиной [19].

Изменение температуры ионной решетки инициирует возникновение волн давления ΔP , плотности $\Delta \rho$ и скорости движения частиц среды u , распространяющихся со скоростью звука u_0 внутри металлического нанослоя и отражающихся от свободной поверхности $r = 0$ и границы металла и подложки $r = L$. Так, в начальные моменты времени формируется область повышенного давления внутри металлического слоя (рис. 1, б, 1, 2), которая вследствие наличия градиентов давления разного знака на свободной поверхности и границе металл/подложка определяет разнонаправленное движение частиц металлического слоя на его поверхностях (рис. 1, в, 1, 2). При отражении волны давления от свободной поверхности $r = 0$ формируется отрицательная ее фаза (см. рис. 1, б, 3–5, $r < L$), а при распаде градиента давления на границе металл/подложка $r = L$ и выходе волны давления в подложку формируется положительная фаза акустического импульса (см. рис. 1, б, 3–5, $r > L$). Таким образом, формируется первый пик биполярного акустического импульса, распространяющийся в дальнейшем в подложке (см. рис. 1, б, 6–9, $r > L$). Пространственные формы других параметров (плотность, скорость движения частиц среды) в целом повторяют форму волны давления.

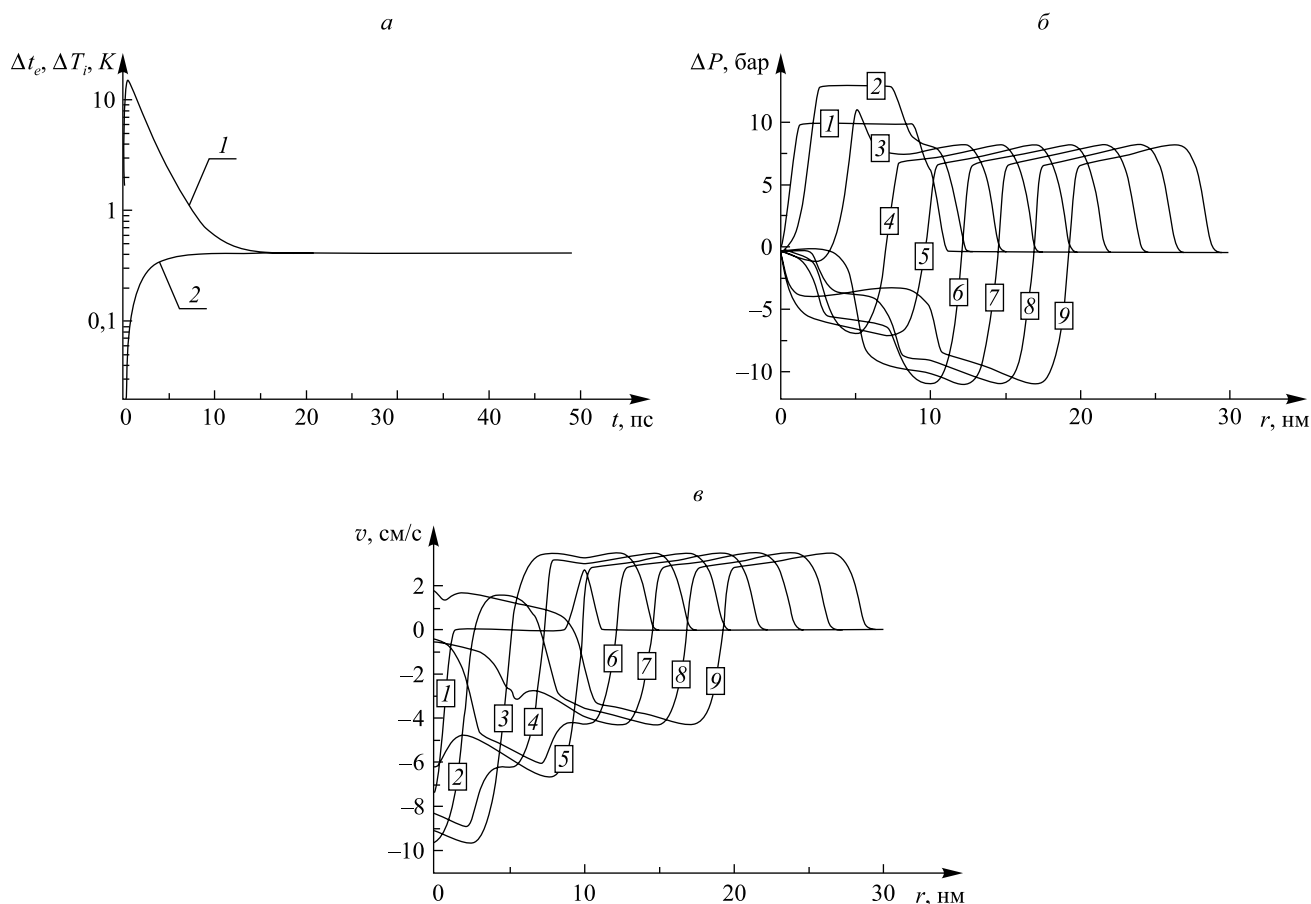


Рис. 1. Временная (а) и пространственно-временные (б, в) зависимости температуры (а), давления (б) и скорости (в);
а: 1 – изменение температуры электронного газа, 2 – изменение температуры ионной решетки;
б, в: 1 – 250 фс, 2 – 500 фс, 3 – 1 пс, 4 – 1,5 пс, 5 – 2 пс, 6 – 2,5 пс, 7 – 3 пс, 8 – 3,5 пс, 9 – 4 пс

В дальнейшем распространяющаяся внутри слоя волна давления при отражении от границы раздела металлической пленки и подложки инициирует в последней возникновение колебаний давления, плотности, скорости движения частиц. При этом появление нескольких пиков в волне давления, распространяющейся в подложке (рис. 2, а), является результатом частичного прохождения волны сжатия/разрежения через границу раздела Al/GaAs. С течением времени, которое определяется отношением акустических импедансов граничащих материалов, амплитуда колебаний уменьшается. Интересно отметить, что для рассмотренного случая Al/GaAs волна давления, выходящая в подложку GaAs, поочередно меняет свой знак (сжатие/разрежение – разрежение/сжатие), что связано с разным знаком амплитудного коэффициента отражения акустической волны $R = (\rho_2 u_{02} - \rho_1 u_{01}) / (\rho_2 u_{02} + \rho_1 u_{01})$ на границах Al/вакуум и Al/GaAs.

Наличие волнообразного движения частиц металлической пленки можно также принять в качестве возникновения ее колебаний как целого. Так, на рис. 2, б, приведена временная зависимость относительного изменения толщины Al-пластинки. Период возбуждаемых акустических колебаний определяется формулой $T = 2L/u_0$ и составляет для рассматриваемого случая $T = 3,8$ пс, амплитуда колебаний прямо пропорциональна интенсивности возбуждающего лазерного импульса.

Проведены также численные эксперименты для структур типа Au/GaAs, Au/Al₂O₃ и др., в которых в качестве металлического покрытия используется золото. Все параметры лазерного излучения соответствовали предыдущим расчетам, использовались стандартные теплофизические параметры золота, толщина металлического слоя полагалась равной $L = 10$ нм. Результаты расчетов структуры волны давления, генерируемой в подложке, и изменения относительной толщины металлической пленки приведены на рис. 2, в, г. Начальная стадия формирования термомеханического отклика слоистой структуры Au/GaAs качественно совпадает с рассмотренным выше случаем структуры Al/GaAs (см. рис. 1). Основным отличием пространственно-временной формы дуга акустических импульсов (см. рис. 2, в) является строгое чередование положительной и отрицательной фаз, что обусловлено одинаковыми знаками амплитудного коэффициента отражения акустической волны на границах Au/вакуум и Au/GaAs. Также наблюдаются четко выраженные изменения толщины металлической пленки (см. рис. 2, г) с периодом $T = 6,2$ пс.

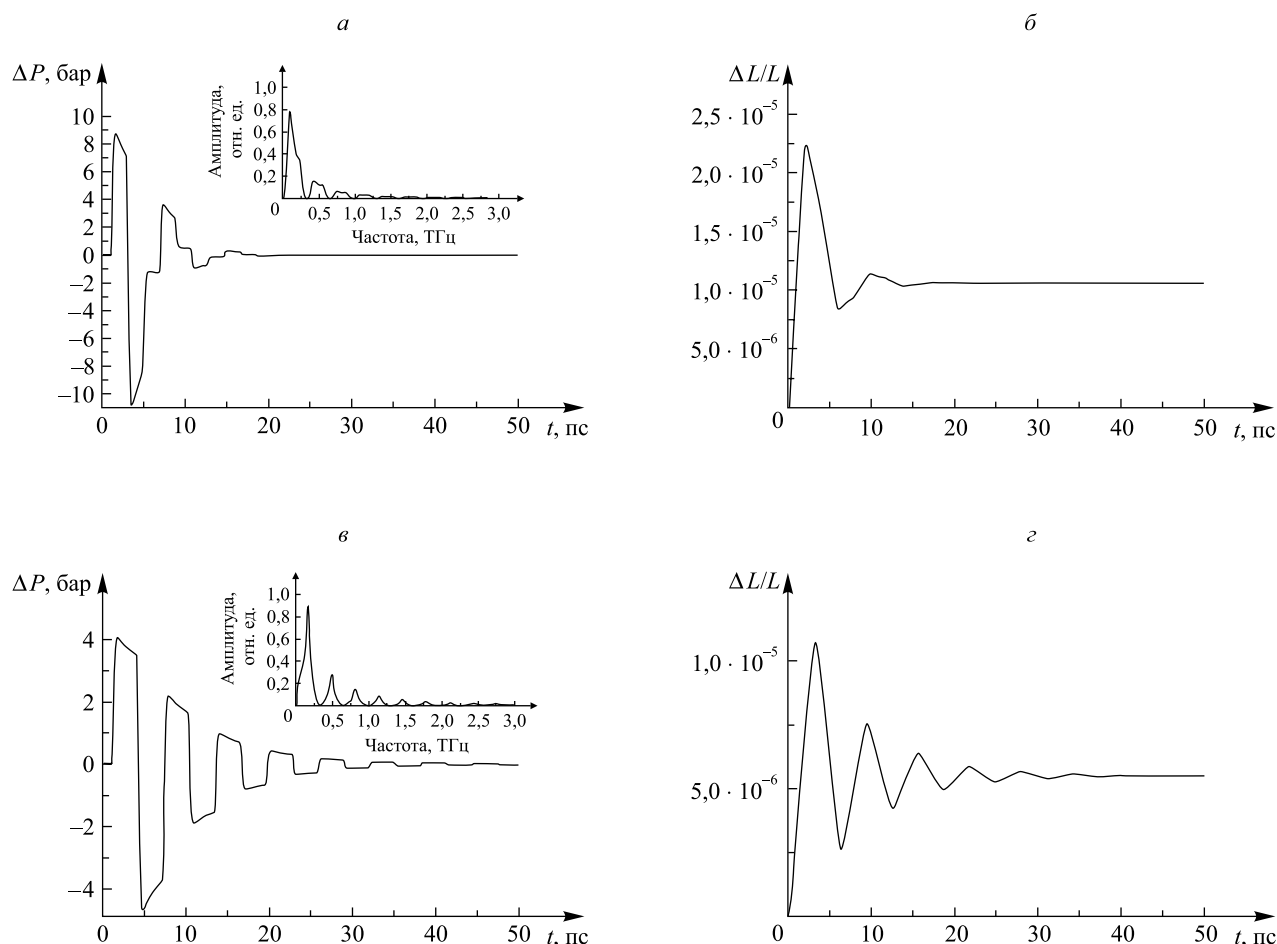


Рис. 2. Временные зависимости: а, в – изменения давления в окружающей среде на расстоянии $r = 5$ нм от поверхности металлического слоя; б, г – относительного изменения толщины металлического слоя; Al/GaAs (а, б), Au/GaAs (в, г). На вставках – частотный спектр акустического сигнала

В заключение отметим, что представленная в работе термомеханическая модель взаимодействия сверхкоротких лазерных импульсов с металлическими слоистыми наноструктурами может быть обобщена на случай наноструктур произвольной геометрии, что позволит изучать сверхбыстрые акустические явления на наномасштабах и моделировать явления взаимодействия световых и акустических волн в различных наноустройствах (фотонные кристаллы, фононные кристаллы, фононные нанорезонаторы и др.).

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК (REFERENCES)

1. Perner M., Gresillon S., März J., von Plessen G., Feldmann J., Porstendorfer J., Berg K.-J., Berg G. Observation of Hot-Electron Pressure in the Vibration Dynamics of Metal Nanoparticles // *Phys. Rev. Lett.* 2000. Vol. 85. P. 792 [Perner M., Gresillon S., März J., von Plessen G., Feldmann J., Porstendorfer J., Berg K.-J., Berg G. Observation of Hot-Electron Pressure in the Vibration Dynamics of Metal Nanoparticles. *Phys. Rev. Lett.* 2000. Vol. 85. P. 792 (in Engl.)].
2. Bienville T., Robillard J. F., Belliard L., Roch-Jeune I., Devos A., Perrin B. Individual and collective vibrational modes of nanostructures studied by picosecond ultrasonics // *Ultrasonics*. 2006. Vol. 44. P. e1289–e1294 [Bienville T., Robillard J. F., Belliard L., Roch-Jeune I., Devos A., Perrin B. Individual and collective vibrational modes of nanostructures studied by picosecond ultrasonics. *Ultrasonics*. 2006. Vol. 44. P. e1289–e1294 (in Engl.)].
3. Kelf T. A., Tanaka Y., Matsuda O., Larsson E. M., Sutherland D. S., Wright O. B. Ultrafast Vibrations of Gold Nanorings // *Nano Lett.* 2011. Vol. 11. P. 3893–3898 [Kelf T. A., Tanaka Y., Matsuda O., Larsson E. M., Sutherland D. S., Wright O. B. Ultrafast Vibrations of Gold Nanorings. *Nano Lett.* 2011. Vol. 11. P. 3893–3898 (in Engl.)].
4. Smith R. J., Perez Cota F., Marques L., Chen X., Arca A., Webb K., Aylott J., Somekh M. G., Clark M. Optically excited nanoscale ultrasonic transducers // *J. Acoust. Soc. Am.* 2015. Vol. 137. P. 219–227 [Smith R. J., Perez Cota F., Marques L., Chen X., Arca A., Webb K., Aylott J., Somekh M. G., Clark M. Optically excited nanoscale ultrasonic transducers. *J. Acoust. Soc. Am.* 2015. Vol. 137. P. 219–227 (in Engl.)].
5. Hartland G. V. Optical Studies of Dynamics in Noble Metal Nanostructures // *Chem. Rev.* 2011. Vol. 111. P. 3858–3887 [Hartland G. V. Optical Studies of Dynamics in Noble Metal Nanostructures. *Chem. Rev.* 2011. Vol. 111. P. 3858–3887 (in Engl.)].
6. Akimov A. V., Tanaka Y., Pevtsov A. B., Kaplan S. F., Golubev V. G., Tamura S., Yakovlev D. R., Bayer M. Hypersonic Modulation of Light in Three-Dimensional Photonic and Phononic Band-Gap Materials // *Phys. Rev. Lett.* 2008. Vol. 101. P. 033902 [Akimov A. V.,

- Tanaka Y., Pevtsov A. B., Kaplan S. F., Golubev V. G., Tamura S., Yakovlev D. R., Bayer M. Hypersonic Modulation of Light in Three-Dimensional Photonic and Phononic Band-Gap Materials. *Phys. Rev. Lett.* 2008. Vol. 101. P. 033902 (in Engl.).
7. Huynh A., Lanzillotti-Kimura N. D., Jusserand B., Perrin B., Fainstein A., Pascual-Winter M. F., Peronne E., Lemaitre A. Subterahertz Phonon Dynamics in Acoustic Nanocavities // *Phys. Rev. Lett.* 2006. Vol. 97. P. 115502 [Huynh A., Lanzillotti-Kimura N. D., Jusserand B., Perrin B., Fainstein A., Pascual-Winter M. F., Peronne E., Lemaitre A. Subterahertz Phonon Dynamics in Acoustic Nanocavities. *Phys. Rev. Lett.* 2006. Vol. 97. P. 115502 (in Engl.)].
8. van Capel P. J. S., Peronne E., Dijkhuis J. I. Nonlinear ultrafast acoustics at the nano scale // *Ultrasonics*. 2015. Vol. 56. P. 36–51 [van Capel P. J. S., Peronne E., Dijkhuis J. I. Nonlinear ultrafast acoustics at the nano scale. *Ultrasonics*. 2015. Vol. 56. P. 36–51 (in Engl.)].
9. Ng Ming-Yaw, Chang Yia-Chung. Laser-induced breathing modes in metallic nanoparticles: A symmetric molecular dynamics study // *J. Chem. Phys.* 2011. Vol. 134. P. 094116 [Ng Ming-Yaw, Chang Yia-Chung. Laser-induced breathing modes in metallic nanoparticles: A symmetric molecular dynamics study. *J. Chem. Phys.* 2011. Vol. 134. P. 094116 (in Engl.)].
10. Зельдович Я. Б., Райзер Ю. П. Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений. М., 1966.
11. Анисимов С. И., Имас Я. А., Романов Г. С., Ходыко Ю. В. Действие излучения большой мощности на металлы. М., 1970.
12. Канель Г. И., Разоренов С. В., Уткин А. В., Фортков В. Е. Ударно-волновые явления в конденсированных средах. М., 1996.
13. Romanov O. G., Romanov G. S. Thermomechanical effect of ultrashort laser pulses on single-dimension metallic nanostructures // *Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys.* 2014. Vol. 78, № 12. P. 1299–1302 [Romanov O. G., Romanov G. S. Thermomechanical effect of ultrashort laser pulses on single-dimension metallic nanostructures. *Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys.* 2014. Vol. 78, No. 12. P. 1299–1302 (in Engl.)].
14. Рухтмайер Р., Мортон К. Разностные методы решения краевых задач. М., 1972.
15. Саульев В. К. Интегрирование уравнений параболического типа методом сеток. М., 1960.
16. Tzianaki E., Bakarezos M., Tsibidis G. D., Orphanos Y., Loukakos P. A., Kosmidis C., Patsalas P., Tatarakis M., Papadogiannis N. A. High acoustic strains in Si through ultrafast laser excitation of Ti thin-film transducers // *Opt. Express*. 2015. Vol. 23, № 13. P. 17191–17204 [Tzianaki E., Bakarezos M., Tsibidis G. D., Orphanos Y., Loukakos P. A., Kosmidis C., Patsalas P., Tatarakis M., Papadogiannis N. A. High acoustic strains in Si through ultrafast laser excitation of Ti thin-film transducers. *Opt. Express*. 2015. Vol. 23, No. 13. P. 17191–17204 (in Engl.)].
17. Lioubtchenko D. V., Briantseva T. A., Markov I. A. Surface acoustic wave monitoring of thin Au film deposition on GaAs surface // *Mater. Phys. Mech.* 2011. Vol. 12. P. 64–75 [Lioubtchenko D. V., Briantseva T. A., Markov I. A. Surface acoustic wave monitoring of thin Au film deposition on GaAs surface. *Mater. Phys. Mech.* 2011. Vol. 12. P. 64–75 (in Engl.)].
18. Sun Lei, Cheng Fei, Mathai Cherian J., Gangopadhyay Shubhra, Gao Jie, Yang Xiaodong. Experimental characterization of optical nonlocality in metal-dielectric multilayer metamaterials // *Opt. Express*. 2014. Vol. 22, № 19. P. 22974–22980 [Sun Lei, Cheng Fei, Mathai Cherian J., Gangopadhyay Shubhra, Gao Jie, Yang Xiaodong. Experimental characterization of optical nonlocality in metal-dielectric multilayer metamaterials. *Opt. Express*. 2014. Vol. 22, No. 19. P. 22974–22980 (in Engl.)].
19. Lin Zh., Zhigilei L. V. Electron-phonon coupling and electron heat capacity of metals under conditions of strong electron-phonon nonequilibrium // *Phys. Rev. B*. 2008. Vol. 77. P. 075133 [Lin Zh., Zhigilei L. V. Electron-phonon coupling and electron heat capacity of metals under conditions of strong electron-phonon nonequilibrium. *Phys. Rev. B*. 2008. Vol. 77. P. 075133 (in Engl.)].

Статья поступила в редколлегию 18.01.2016.
Received by editorial board 18.01.2016.