

12. *Nelms R.J., Hatton P.E., Vass H.* // Phys. Rev. Lett. 1988. **60**, No. 21. P. 2172.
13. *Willemsen H.W., Armstrong R.A., Meinske P.P.* // Phys. Rev. 1976. **B14**, No. 8. P. 3644.
14. *Плакида Н.М., Насруллоев Х.* // Кристаллография. 1985. **30**, № 6. С. 1183.
15. *Golding B.* // Phys. Rev. Lett. 1970. **25**, No. 20. P. 1439.
16. *Коробов А.И., Бражкин Ю.А.* // ФТТ. 1996. **38**, № 1. С. 63.
17. *Пекар С.И., Демиденко А.А., Здебский А.П. и др.* // ДАН СССР. 1976. **230**, № 5. С. 1089.
18. *Юшин Н.К., Сотников А.В.* // ФТТ. 1980. **22**, № 10. С. 2772.
19. *Бражкин Ю.А., Коробов А.И., Лямов В.Е.* // ФТТ. 1981. **23**, № 5. С. 1545.
20. *Mao Lui, Finlaison T.R., Smith T.F.* // Phys. Rev. 1997. **B55**, № 6. P. 3480.

Поступила в редакцию
23.04.03

УДК 534.212+534.232

ВЛИЯНИЕ ТОЛЩИНЫ СУБМИКРОННОЙ МЕТАЛЛИЧЕСКОЙ ПЛЕНКИ НА ЭФФЕКТИВНОСТЬ ТЕРМООПТИЧЕСКОЙ ГЕНЕРАЦИИ УЛЬТРАЗВУКА В СИСТЕМЕ ПОДЛОЖКА–ПЛЕНКА–ЖИДКОСТЬ

А. А. Карабутов, В. В. Кожушко, И. М. Пеливанов, Н. Б. Подымова

(Международный учебно-научный лазерный центр)

E-mail: ivan@sasha.phys.msu.su

Рассматривается прямая задача оптоакустики для системы, в которой напыленная на кварцевую подложку металлическая пленка контактирует с иммерсионной жидкостью. Исследуется влияние толщины пленки на эффективность оптико-акустического преобразования. В эксперименте использованы пленки хрома различной толщины и две иммерсионные жидкости: ацетон и этанол. Результаты измерений и теоретического моделирования позволяют сделать вывод о возможности определения толщины субмикронных металлических покрытий и исследования их теплофизических параметров по передаточной функции ОА преобразования.

Оптико-акустические (ОА) методы в настоящее время находят широкое применение в задачах неинвазивной диагностики неоднородных сред и медицине [1–5]. В отсутствие нелинейных эффектов [6–8], влияния характеристик возбуждающего лазерного излучения и свойств поглощающей среды на временной профиль ОА импульса могут быть разделены [8, 9]. Передаточная функция ОА преобразования $K(f)$ показывает эффективность возбуждения звуковых колебаний различной частоты при воздействии на среду импульсного лазерного излучения и определяется как отношение фурье-спектров импульса давления $\tilde{p}(f)$ и временной огибающей интенсивности лазерного импульса $\tilde{L}(f)$:

$$K(f) = \tilde{p}(f) / \tilde{L}(f). \quad (1)$$

Особый интерес представляет решение обратной задачи оптоакустики [10] — нахождение теплофизических и физико-механических параметров поглощающей среды по временной форме давления широкополосного ОА импульса или по передаточной функции ОА преобразования. Данная задача не всегда имеет аналитическое решение, однако современное развитие вычислительной техники позволяет в некоторых случаях свести ее к итерационной процедуре решения прямой задачи.

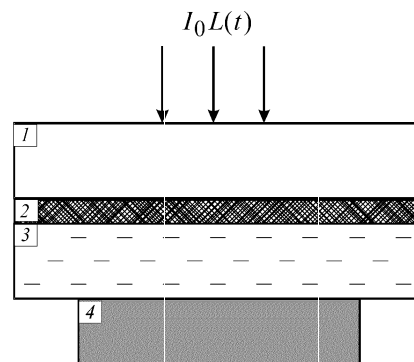


Рис. 1. ОА преобразование в системе кварцевая подложка (1) — пленка хрома (2) — иммерсионная жидкость (3). Широкополосный акустический пьезоприемник (4) расположен со стороны жидкости

Настоящая работа направлена на решение прямой задачи оптоакустики — нахождения передаточной функции ОА преобразования — для системы, в которой напыленная на прозрачную для лазерного излучения кварцевую подложку пленка контактирует с иммерсионной жидкостью (рис. 1). Цель работы — установление закономерностей влияния толщины покрытия на передаточную функцию ОА преобразования.

Рассмотрим структуру, изображенную на рис. 1. Пусть лазерный импульс длительностью τ_L с вре-

менной огибающей интенсивности $I_0 L(t)$ падает на пленку со стороны кварцевой подложки, а регистрация возбуждаемого в среде ОА сигнала происходит в жидкости (прямая схема регистрации). Определим характерные пространственные масштабы протекающих за время лазерного воздействия процессов. Первый масштаб — это глубина проникновения света в среду d_{op} , которая для металлов составляет $\sim 10^{-6}$ см [11]. Второй характерный масштаб — глубина диффузии тепла $d_{th} = \sqrt{\chi \tau_L}$ (χ — теплопроводность) за время действия лазерного импульса. Третий масштаб — акустический — $d_{ac} = c_L \tau_L$ (c_L — скорость звука в среде), характеризует расстояние, на которое распространяется звук за время тепловыделения. Соотношение между этими масштабами определяет характер термооптического возбуждения звука в поглощающей среде. Для металлов $\chi \sim 1 \text{ см}^2/\text{с}$ [12], а $c_L \sim 5 \cdot 10^5 \text{ см}/\text{с}$ [11], поэтому при $\tau_L = 10 \text{ нс}$ $d_{op} \ll d_{th} \ll d_{ac}$ нагрев можно считать поверхностным, и температурное поле в пленке и, следовательно, в жидкости определяется теплопроводностью.

Будем рассматривать тепловой механизм, который является преобладающим при генерации звука наносекундными лазерными импульсами в металлах. Если диаметр лазерного пучка много больше глубины проникновения света в поглощающую среду, задача может рассматриваться как одномерная, и ее аналитическое решение в большинстве твердых тел целесообразно проводить поэтапно. Вплоть до частот $f \sim 10^{11} \text{ с}^{-1}$ распространение звука происходит адиабатически. Поэтому на первом этапе необходимо найти температурное поле в среде с учетом теплопроводности металлической пленки и диффузии части теплового потока в жидкость, что сводится к решению уравнений теплопроводности с условиями равенства температур и непрерывности тепловых потоков на границах сред:

$$\begin{cases} \partial T_1 / \partial t = \chi_1 \Delta T_1, & z < 0, \\ \partial T_2 / \partial t = \chi_2 \Delta T_2, & 0 < z < h, \\ \partial T_3 / \partial t = \chi_3 \Delta T_3, & z > h, \end{cases} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} T_1 \Big|_{z=0} &= T_2 \Big|_{z=0}, \\ \rho_1 c_{p1} \chi_1 \partial T_1 / \partial z \Big|_{z=0} &= \rho_2 c_{p2} \chi_2 \partial T_2 / \partial z \Big|_{z=0} + I_0 L(t), \\ T_2 \Big|_{z=h} &= T_3 \Big|_{z=h}, \\ \rho_2 c_{p2} \chi_2 \partial T_2 / \partial z \Big|_{z=h} &= \rho_3 c_{p3} \chi_3 \partial T_3 / \partial z \Big|_{z=h}. \end{aligned}$$

Здесь ось z направлена внутрь пленки, индексы $i = 1, 2, 3$ относятся к подложке, пленке и жидкости соответственно, c_{pi} и χ_i — теплоемкости при постоянном давлении и теплопроводности сред. Общее решение (2) для фурье-гармоник температур-

ного поля будет выглядеть следующим образом:

$$\tilde{T}_i = C_i \exp \left(-\sqrt{\frac{-i2\pi f}{\chi_i}} z \right) + D_i \exp \left(\sqrt{\frac{-i2\pi f}{\chi_i}} z \right). \quad (3)$$

Коэффициенты C_i и D_i могут быть найдены из граничных условий системы (2), записанных в спектральной форме. Заметим, что в силу отсутствия тепловых источников на бесконечности коэффициенты C_1 и D_3 равны нулю.

Акустическая часть задачи может быть найдена из решения волнового уравнения для потенциала колебательной скорости, в правой части которого стоят тепловые источники, распределение которых находится из (3):

$$c_{Li}^{-2} \partial^2 \varphi_i / \partial t^2 - \Delta \varphi_i = -\beta_i^* \partial T_i / \partial t, \quad (4)$$

где β_i^* — эффективные коэффициенты теплового расширения сред и c_{Li} — скорости продольных акустических волн соответственно. Таким образом, в подложке, пленке и жидкости мы получим общее решение для фурье-гармоник скалярного потенциала φ :

$$\begin{aligned} \tilde{\varphi}_i &= E_i \exp \left(-\frac{i2\pi f}{c_{Li}} z \right) + F_i \exp \left(\frac{i2\pi f}{c_{Li}} z \right) + \\ &+ \frac{C_i \exp \left(-\sqrt{i2\pi f / \chi_i} z \right) + D_i \exp \left(\sqrt{i2\pi f / \chi_i} z \right)}{i2\pi f / \chi_i + (2\pi f / c_{Li})^2}. \end{aligned} \quad (5)$$

Неизвестные коэффициенты E_i и F_i в каждом слое характеризуют амплитуды гармоник, распространяющихся в положительном и отрицательном направлении оси z соответственно. Для их определения должны быть использованы условия непрерывности давления и колебательной скорости на границах раздела сред:

$$\rho_i \tilde{\varphi}_m = \rho_{i+1} \tilde{\varphi}_{i+1}, \quad \partial \tilde{\varphi}_i / \partial z = \partial \tilde{\varphi}_{i+1} / \partial z. \quad (6)$$

В силу принципа причинности коэффициенты E_1 и F_3 равны нулю. Решение системы из четырех уравнений и такого же количества неизвестных было найдено численно.

В экспериментальных исследованиях акустические сигналы регистрировались в жидкости, поэтому для фурье-спектра давления в жидкости получим:

$$\tilde{p}_L = \rho_L \partial \tilde{\varphi}_L / \partial t = -2\pi i f \rho_L \varphi_L. \quad (7)$$

Передаточная функция ОА преобразования (1) может быть найдена из выражения (1).

На рис. 2. приведены результаты расчета передаточной функции ОА преобразования для струк-

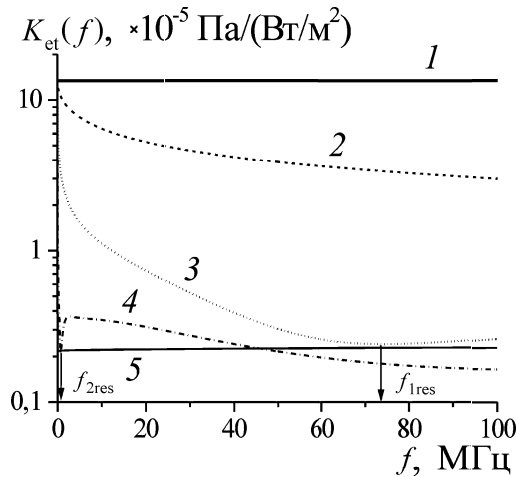


Рис. 2. Передаточные функции ОА преобразования в системе кварцевая подложка – пленка хрома – этанол, полученные по результатам моделирования. Кривая 1 соответствует толщине пленки $h_{Cr} \ll d_{th}$, кривая 5 – $h_{Cr} \gg d_{th}$, кривые 2, 3, 4 – $h_{Cr} = 0.1, 1$ и 10 мкм соответственно

туры, изображенной на рис. 1. Теплофизические параметры сред были взяты из [11, 12]. Рассмотрим влияние толщины пленки хрома h_{Cr} на эффективность ОА преобразования. В предельном случае $h_{Cr} \gg d_{th} = \sqrt{\chi_{Cr}\tau_L}$ (кривая 5 на рис. 2) получается известный результат [8]: передаточная функция $K(f)$ практически не зависит от частоты, т.е. возбуждение звука на всех частотах происходит почти с одинаковой эффективностью в интересующем нас диапазоне до 100 МГц (этот диапазон частот следует из (1), так как спектр огибающей интенсивности лазерного импульса ограничен данной частотой). На временном языке это означает, что профиль возбуждаемого ОА сигнала повторяет $L(t)$. Небольшой едва заметный спад на низких частотах объясняется импедансным характером границы кварц–хром [8]. В данном случае, тепло не доходит до жидкости, поэтому ее вклад в генерацию звука отсутствует.

Во втором предельном случае – пленки бесконечно малой толщины ($h_{Cr} \ll d_{th}$) (рис. 2, кривая 1) – все поглощенное средой тепло, не затухая, сразу передается в жидкость. Благодаря низкой теплопроводности жидкостей (для этанола $\chi_{et} = 8.6 \times 10^{-4}$ см²/с) ее нагрев происходит в приграничном слое. Генерация звука имеет место с локализованными поверхностными источниками с одинаковой эффективностью на всех частотах. Временная форма ОА импульса также будет соответствовать $L(t)$. Амплитуда ОА сигнала в случае поглощения света тонкой пленкой на два порядка больше, чем при $h_{Cr} \gg \sqrt{\chi_{Cr}\tau_L}$. Это объясняется тем, что значение коэффициента прохождения звука из хрома в этанол составляет 0.06.

В промежуточном случае (рис. 2, кривые 2, 3, 4) эффективность возбуждения акустических волн зависит от частоты. В результате диффузии в металлической пленке тепловая волна будет испытывать затухание $\sim \exp\left(\sqrt{2\pi f/\chi_{Cr}z}\right)$ [13]. Поэтому

в металле генерация звука будет происходить во всем диапазоне частот, а в жидкости – только на низких частотах. Результирующий акустический отклик будет складываться из суммы вкладов пленки и жидкости, что приводит к относительному усилению низких частот. Чем тоньше пленка, тем больше тепла доходит до жидкости, и подъем в передаточной функции захватывает более широкий частотный диапазон. Значения всех кривых на нулевой частоте совпадают и соответствуют величине эффективности преобразования тепла в звук в этаноле. С другой стороны, на бесконечности кривые будут сходиться, так как их значения определяются ОА преобразованием в объемном металле.

Заметим интересный факт: в рассматриваемом диапазоне частот до 100 МГц, две кривые, соответствующие толщине 1 и 10 мкм, имеют локальные минимумы (для пленки толщиной 0.1 мкм минимум смещен в более высокочастотную область). Природа их появления связана с интерференцией тепла внутри пленки [14], резонанс в передаточных функциях соответствует частоте $f_{res} \sim \chi_{Cr}/h_{Cr}^2$, на которой происходит эффективное отражение тепловой волны от границы хром–этанол, а затухание тепла в пленке еще не слишком велико.

Экспериментальные исследования проводились для трех пленок хрома различной толщины, напыленных на кварцевую подложку. Свободной стороной пленки были погружены в две различные иммерсионные жидкости: этанол и ацетон (см. рис. 1). Облучение среды происходило импульсами основной гармоникой Nd:YAG лазера с модуляцией добротности ($\tau_L = 10$ нс, диаметр пучка на поверхности пленки составлял около 10 мм, плотность энергии $E_0 \sim 0.5-1$ МДж/см²). Регистрация термооптически возбуждаемых акустических сигналов происходила в жидкости широкополосным нерезонансным акустическим приемником.

Для устранения влияния неравномерности частотной переходной характеристики датчика на форму регистрируемых сигналов был измерен отклик приемника на сигнал известной формы. Тестовый сигнал возбуждался в водном растворе черной туши, нагруженном пластиной оргстекла. Его спектр изображен на рис. 3 (жирная линия). В линейном случае он состоит из пяти составляющих:

$$\tilde{p}_{ink}(f) = K_{ink}(f) \cdot Tr(f) \cdot D(f) \cdot Att_{ink}(f) \cdot \tilde{L}(f). \quad (8)$$

Передаточная функция $K_{ink}(f)$ (рис. 3, тонкая линия) такой системы хорошо известна [9]. Коэффициент поглощения раствора туши и частотная зависимость затухания $Att_{ink}(f)$ измерялись экспериментально [15]. Таким образом, это позволило определить произведение неизвестной переходной характеристики приемника, фактора $D(f)$, обусловленного дифракцией акустических волн в звукопроводе приемника, и спектра огибающей интенсивности лазерного импульса.

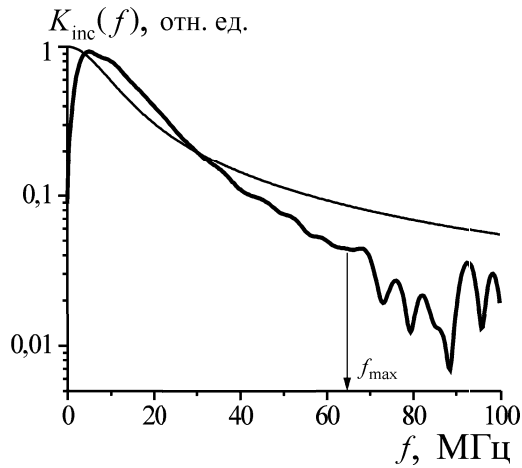


Рис. 3. Спектр экспериментально измеренного ОА сигнала (жирная линия) и передаточная функция ОА преобразования (тонкая линия) в тестовой системе пластина оргстекла – черная тушь

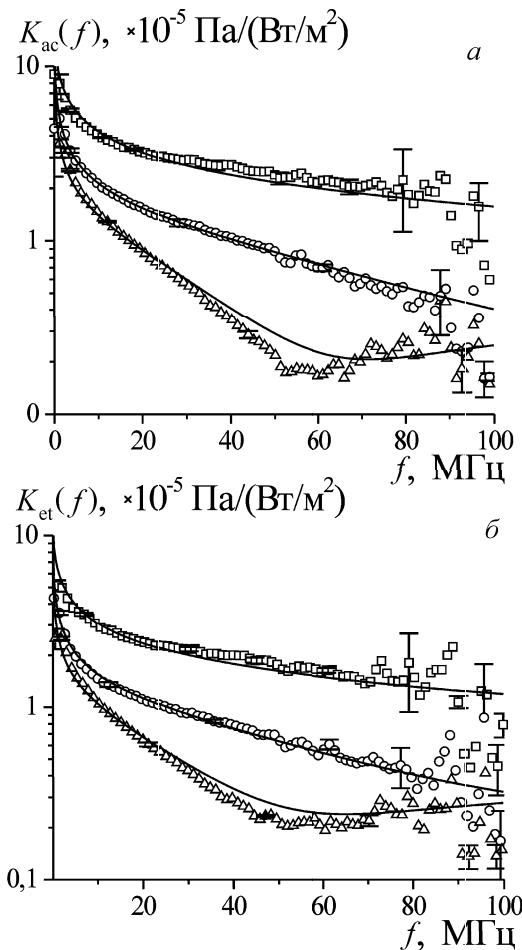


Рис. 4. Передаточные функции ОА преобразования в системе кварцевая подложка – пленка хрома – ацетон(а)/этанол(б) при различных толщинах пленки. Сплошными линиями изображены результаты моделирования – аппроксимации экспериментальных зависимостей методом наименьших квадратов по параметру h_{Cr}^{var} . Для ацетона – $h_{Cr}^{var} = 0.3$ (□), 0.7 (○) и 1.06 мкм (△) соответственно. Для этанола – $h_{Cr}^{var} = 0.3$ (□), 0.68 (○) и 1.05 мкм (△) соответственно

На рис. 4, а, б в абсолютных единицах символами изображены передаточные функции ОА преобразования для системы с ацетоном $K_{ac}(f)$ и этанолом $K_{et}(f)$ соответственно. Эти функции определялись из соотношения

$$K_{ac,et}(f) = \bar{p}_{ac,et}(f) / \left(\text{Tr}(f) \cdot D(f) \cdot \tilde{L}(f) \right) / \text{Att}_{ac,et}(f), \quad (9)$$

где $\bar{p}_{ac,et}(f)$ — фурье-спектры экспериментально зарегистрированных ОА сигналов (рис. 5), усредненные по трем независимым измерениям, $\text{Att}_{ac,et}(f)$ — спектры затухания ультразвука [11] в ацетоне и этаноле соответственно. Произведение функций, стоящее в скобках (9), находилось из (8). Дифракция как тестового, так и исследуемых импульсов в звукопроводе приемника (отрицательные хвосты у импульсов на рис. 5) приводит к подавлению в их спектрах низких частот, что дает большую ошибку в экспериментальных зависимостях в этой части характеристик. На высоких частотах ситуация схожая. В спектре тестового импульса на частотах выше $f_{max} \approx 65$ МГц появляются шумы (см. рис. 3), которые объясняются динамическим диапазоном приемного тракта в $40 \sim 45$ дБ. Поэтому определение передаточной функции исследуемой системы выше частоты f_{max} , вообще говоря, не достаточно точно.

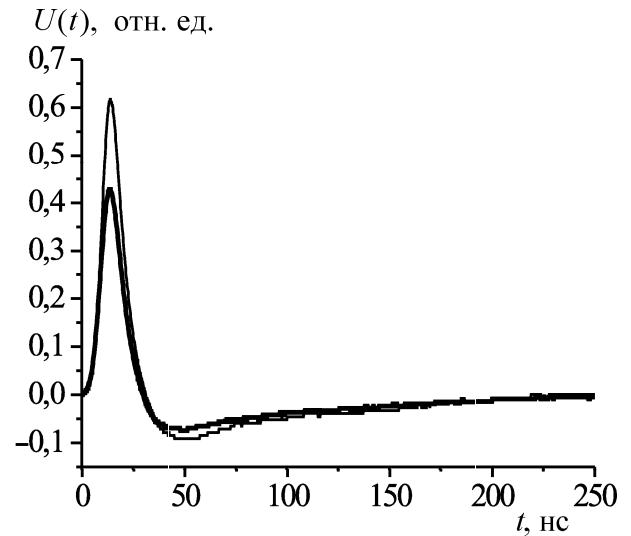


Рис. 5. Профили ОА сигналов, возбуждаемых в системе кварцевая подложка – пленка хрома – этанол (жирная линия) или ацетон (тонкая линия). Толщина пленки хрома $h_{Cr} \approx 0.3$ мкм

Формы импульсов, приведенные на рис. 5, показывают, что при одной и той же толщине пленки амплитуда ОА сигнала, а следовательно, и значения передаточной функции на низких частотах для системы с ацетоном больше, чем для этанола. Это объясняется тем, что эффективность термооптического возбуждения звука в ацетоне выше, чем в этаноле. С другой стороны, при $f \rightarrow \infty$ зависимости будут выходить на константу, которая определяется эффективностью генерации звука в металле, нагруженном кварцем, и не зависит от свойств иммерсионной жидкости.

Уточним, что толщина пленок не была известна заранее. Полученные экспериментально передаточные функции аппроксимировались методом наименьших квадратов с единственным подгоночным параметром h_{Cr} . Все остальные константы, необходимые для расчета, были взяты из [11, 12]. Для всех приведенных на рис. 4 экспериментальных зависимостей наблюдается хорошее соответствие с данными численного моделирования. Небольшие отклонения расчетных кривых от экспериментальных, возможно, объясняются некоторым несоответствием реальных теплофизических параметров хрома, этанола и ацетона и величин, приведенных в [11, 12]. Вторым источником расхождений может быть не учитываемый в моделировании эффект тепловой нелинейности [7, 8]. Максимальный нагрев приграничного с пленкой слоя жидкости $\Delta T \approx E_0 / \rho_{Cr} c_{pCr} h_{th} \sim 1$ К. При таком нагреве вариации теплофизических параметров жидкости составляют $\approx 1\%$, что может внести нелинейную добавку в возбуждаемый ОА сигнал.

Необходимо отметить, что при использовании различных иммерсионных жидкостей для каждого из трех используемых покрытий моделирование дает близкие значения для толщины пленок хрома. Отличие в 20 нм не превышает ошибок эксперимента. Этот результат дает возможность свести обратную задачу оптоакустики к итерационной процедуре решения прямой, т. е. предложить метод неразрушающих измерений толщины металлических пленок по передаточной функции ОА преобразования.

Подведем некоторые итоги. В настоящей работе решена прямая задача оптоакустики для системы, в которой металлическая пленка произвольной толщины расположена между кварцевой подложкой и иммерсионной жидкостью. Теоретически показано, что эффективность ОА преобразования сильно зависит от толщины пленки. Благодаря затуханию на высоких частотах тепловой волны в металлической пленке генерация звука за счет теплового расширения жидкости происходит в низкочастотном диапазоне и имеет наибольшую эффективность. С другой стороны, на высоких частотах передаточная функция не зависит от свойств иммерсионной жидкости и определяется распределением теплового поля в металле. Результаты экспериментов, проведенных по стандартной ОА методике с пленками хрома, напыленными на кварцевую подложку, дали

хорошее согласование с данными теоретического моделирования. Это позволило установить однозначную связь между толщиной пленки и спектральной передаточной функцией, что в свою очередь может быть использовано для неразрушающего измерения толщины субмикронных металлических покрытий, а также исследования их теплофизических параметров.

Работа поддержана грантом Президента Российской Федерации для поддержки молодых российских ученых и ведущих научных школ Российской Федерации (грант МК-1926.2003.02), а также РФФИ (грант 01-02-16539).

Литература

1. Kruger R.A., Reinecke D.R., Kruger G.A. // *Med. Phys.* 1999. **26**, No. 9. P. 1832.
2. Kostli K.P., Frenz M., Bebie H., Weber H.P. // *Phys. Med. Biol.* 2001. **46**, No. 7. P. 1863.
3. Andreev V.G., Karabutov A.A., Solomatin S.V. et al. // *Proc. SPIE.* 2000. **3916**. P. 36.
4. Mandelis A. // *NDT&E International.* 2001. **34**. P. 277.
5. Buma T., Spisar M., O'Donnell M. // *Appl. Phys. Lett.* 2001. **79**, No. 4. P. 548.
6. Diebold G.J., Westervelt P.J. // *J. Acoust. Soc. Am.* 1988. **84**. P. 2245.
7. Inkov V.N., Karabutov A.A., Pelivanov I.M. // *Laser Physics.* 2001. **12**, No. 11. P. 1283.
8. Гусев В.Э., Карабутов А.А. *Лазерная оптоакустика.* М., 1991.
9. Черепецкая Е.Б. Термооптическое возбуждение и взаимодействие случайных волн в средах без дисперсии // Дис. ... канд. физ.-мат. наук. М., 1980.
10. Andreev V.G., Popov D.A., Sushko D.V., Karabutov A.A., Oraevsky A.A. // *Proc. SPIE.* 2002. **4618**. P. 137.
11. Физические величины. Справочник / Под ред. И.С. Григорьева М., 1991.
12. Вайсберг А., Проскауэр Э., Риддик Дж., Тунс Э. *Органические растворители.* М., 1958.
13. Carslaw H.S., Jaeger J.C. *Conduction of heat in solids.* Oxford, 1959.
14. Lau S.K., Almond D.P., Patel P.M. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1991. **24**. P. 428.
15. Karabutov A.A., Podymova N.B., Letokhov V.S. // *Appl. Phys.* 1996. **B63**. P. 545.

Поступила в редакцию
03.07.03