

Неравновесный нагрев электронов, плавление и модификация нанопленки никеля ультракоротким импульсом терагерцового излучения

С. И. Ашитков¹⁾, П. С. Комаров, А. В. Овчинников, С. А. Ромашевский, Е. В. Струлева¹⁾, О. В. Чефонов, М. Б. Агранат

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Объединенный институт высоких температур РАН (ОИВТ РАН), 125412 Москва, Россия

Поступила в редакцию 16 мая 2024 г.
После переработки 17 сентября 2024 г.
Принята к публикации 18 сентября 2024 г.

Методом фемтосекундной интерференционной микроскопии с временным разрешением 10^{-13} с проведены исследования динамики изменения оптических свойств пленки никеля толщиной 25 нм на стеклянной подложке при ее возбуждении субпикосекундным импульсом терагерцового излучения с напряженностью поля 11 МВ/см. Результаты измерений комплексного коэффициента отражения и диэлектрической проницаемости в видимом диапазоне спектра свидетельствуют о неравновесном нагреве электронной подсистемы никеля до нескольких тысяч градусов, который сопровождается индуцированным увеличением отражения в момент воздействия и последующим плавлением спустя 5–10 пс. Исследование морфологии модифицированной поверхности методами сканирующей электронной и зондовой микроскопии свидетельствует о локальном плавлении нанопленки и ее деламации от подложки при данном значении напряженности поля.

DOI: 10.31857/S0370274X24100181, EDN: DGSTTT

Введение. В последние годы в связи с появлением новых мощных импульсных источников излучения терагерцового (ТГц) диапазона спектра на основе нелинейных органических кристаллов с высокой напряженностью поля [1–4] повышенный интерес проявляется к изучению их воздействия на различные материалы [5–7], включая наноразмерные металлические пленки, являющиеся компонентами оптики и магнитооптики ТГц диапазона [8, 9]. Данный интерес обусловлен как нелинейным характером взаимодействия [10–12], так и спецификой их разрушения при однократном и многократном воздействии [13–17].

Особенностью ТГц диапазона спектра (1–10 ТГц) является низкая энергия квантов излучения (2.4–24 мэВ). Воздействие такого излучения не является “ионизирующим” для электронных процессов в металлах и полупроводниках и хорошо описывается классической теорией электромагнитных волн. Специфические свойства тонких металлических пленок с толщиной d , много меньшей толщины скин-слоя δ при их взаимодействии с электромагнитным излучением микроволнового и ТГц диапазона, исследуются

давно [18]. Такие пленки имеют максимум поглощения, достигающий 50 %, при критической толщине $d_0 = c/2\pi\sigma$ (диапазон d_0 от единиц до десятков нанометров), зависящей от величины проводимости σ [19, 20]. По мере увеличения толщины при $d > d_0$ пленка начинает эффективно отражать электромагнитное излучение. Причина роста отражения с увеличением толщины заключается в эффекте экранировки, состоящем в интерференции падающего и введенного в образце магнитных полей. В зависимости от параметров металлические нанопленки используются в ТГц диапазоне и как поглощающие элементы детекторов [20], и как отражающие зеркала [9]. Поскольку проводимость нанопленок наряду с толщиной в значительной степени зависит от качества поверхности и степени неоднородности их структуры (соотношение размера зерна и толщины нанопленки) [21], развитие методов диагностики и оптимизации их параметров для конкретных приложений является весьма актуальной.

Особое место здесь занимают магнитные материалы [22], в частности, пленки никеля [8], в которых ТГц излучение, в отличие от оптического, непосредственно влияет на динамику спиновой подсистемы. Современные перспективные магнитные многослойные материалы на основе попеременно уложенных

¹⁾e-mail: struleva.evgenia@yandex.ru; ashitkov11@yandex.ru; sa.romashevskiy@gmail.com

немагнитных и магнитных металлических слоев толщиной 10–20 нм (в том числе структуры Ni/Al/Ni) ответственны за гигантское магнитное сопротивление (ГМС), которое играет ключевую роль в устройствах магнитной памяти, датчиках и других приложениях спинтроники, в том числе спиновых клапанов с пикосекундным быстродействием [23]. В основе явления ГМС лежит проводимость электронов, управляемая спин-зависимым рассеянием на границах раздела ферромагнитных/немагнитных нанослоев, которая остается мало изученной в ТГц частотной области.

В этом контексте представляется важным проведение экспериментов по воздействию высокоинтенсивного ТГц импульсного излучения на металлические пленки субволновой толщины с целью изучения транспорта энергии между электронной и ионной подсистемами на наномасштабах во временной области. Особенность воздействия ТГц импульсов по сравнению с ультракороткими импульсами (УКИ) оптического или ближнего инфракрасного (ИК) диапазона состоит в существенно более низкой энергии фотонов излучения, близкой к характерным энергиям колебаний решетки.

В работе [10] был проведен теоретический анализ нелинейного воздействия субпикосекундного ТГц импульса с напряженностью поля до 90 МВ/см на нанопленки алюминия. Было показано, что в процессе нагрева металла мощным ультракоротким импульсом ТГц излучения температура электронов проводимости T_e может существенно превышать температуру решетки T_i . При этом существенное увеличение эффективной частоты столкновений электронов при нагреве должно приводить к заметному увеличению коэффициента отражения и пропускающей способности металлической пленки.

В то же время, насколько нам известно, в отличие от экспериментов с воздействием оптических ультракоротких импульсов, о возбуждении двухтемпературного (2Т) состояния с помощью импульсов ТГц диапазона спектра ранее не сообщалось.

Впервые возможность неравновесного нагрева электронов и решетки в металлах была теоретически рассмотрена в работах [24, 25] в связи с экспериментально наблюдаемым отклонением от закона Ома при пропускании через проводник сильного электрического тока [26]. В дальнейшем, в работе [27] была развита двухтемпературная модель, описывающая состояние вещества с $T_e > T_i$, которая до настоящего времени успешно применяется для интерпретации воздействия на металлы УКИ оптического и ИК диапазона спектра [28–30]. В частности, в

экспериментах по измерению термоиндуцированного отражения (TTR – transient thermo reflectance) накоплен обширный материал о параметрах электрон-фононного теплообмена и теплопроводности в условиях неравновесного нагрева УКИ для металлов с различной зонной структурой [31–37]. Важно отметить различие в динамике сигнала TTR для разных длин волн зондирующего излучения, связанное с особенностями зонной структуры металлов [32]. В частности, в ближнем ИК диапазоне специфика оптического отклика Ni [37], в отличие от Au, Al и Pt [33–36], состоит в изменении знака термоиндуцированного отражения ΔR в процессе релаксации температур электронов и решетки. Это позволяет с более высокой степенью надежности идентифицировать возникновение 2Т состояния у Ni по временной динамике коэффициента отражения $\Delta R(t)$.

В настоящей работе с помощью гибридной схемы фемтосекундной интерференционной микроскопии, сочетающей возбуждение исследуемого образца мощным субпикосекундным импульсом ТГц излучения и зондирование фемтосекундными импульсами видимого диапазона, получены новые данные о релаксации энергии между электронной и ионной подсистемами в пленочном образце никеля вблизи порога плавления.

Измеренная временная эволюция коэффициента отражения свидетельствует о возникновении ранее нерегистрируемого в эксперименте неравновесного 2Т состояния с $T_e > T_i$, возбуждаемого импульсом ТГц излучения. Одновременная регистрация изменения амплитуды и фазы зондирующего импульса позволила получить данные о пикосекундной динамике комплексной диэлектрической проницаемости, свидетельствующие о возникновении жидкой фазы на временах $\sim 10^{-11}$ с после воздействия. Проведенные исследования морфологии на сканирующем электронном микроскопе (СЭМ) и атомно-силовом микроскопе (АСМ) показали наличие модификации поверхности нанопленки с существенным увеличением ее шероховатости после нагрева, по-видимому, связанной с эффектом деветинга (dewetting [38]).

Методика и материалы. Генерация импульсов мощного ТГц излучения осуществлялась методом оптического выпрямления фемтосекундных лазерных импульсов, создаваемых хром-форстеритовой лазерной системой с длиной волны излучения $\lambda_1 = 1240$ нм и длительностью 100 фс, в нелинейном органическом кристалле DSTMS диаметром 8 мм. Измерения проводились в закрытом корпусе с относительной влажностью воздуха менее 5%. Для фильтрации излучения лазерной накачки после кри-

сталла был установлен отрезающий ТГц фильтр (LPF8.8-47, Tydex). Коэффициент ослабления фильтра на длине волны излучения 1240 нм составлял величину не менее 10^5 .

На рисунке 1 приведена оптическая схема фемтосекундной интерференционной микроскопии, предназначенная для изучения пикосекундной динамики изменения оптических свойств нанопленок с временным и пространственным разрешением. Отличительной особенностью данной схемы является использование в качестве накачки мощного субпикосекундного широкополосного импульса в диапазоне частот 0.3–3 ТГц (центральная длина волны $\lambda_1 = 200$ мкм). В качестве зондирующего использовался импульс второй гармоники с длиной волны 620 нм (энергия кванта 2 эВ).

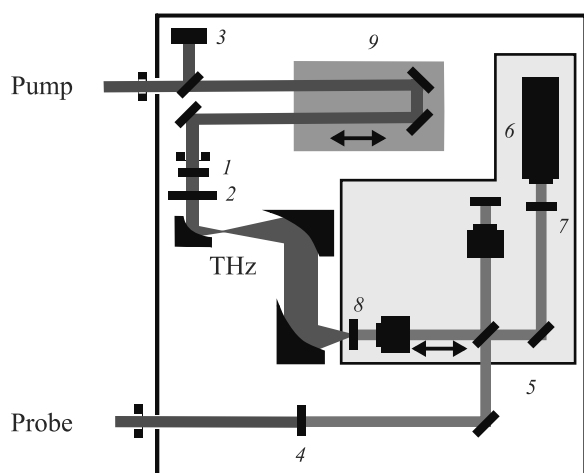


Рис. 1. (Цветной онлайн) Оптическая схема измерений: 1 – нелинейный кристалл DSTMS; 2 – терагерцовый фильтр; 3 – фотодиод; 4 – кристалл KDP; 5 – интерферометр Майкельсона; 6 – ПЗС камера; 7 – интерференционный фильтр; 8 – образец; 9 – оптическая линия задержки

Для уменьшения расходимости пучок ТГц излучения расширялся до диаметра ~ 40 мм (по уровню $1/e^2$) с помощью телескопа 6:1, состоящего из двух внеосевых параболических зеркал с эффективным фокусным расстоянием 25.4 и 152.4 мм. Фокусировка ТГц пучка осуществлялась внеосевым параболическим зеркалом диаметром 50.8 мм и с эффективным фокусным расстоянием 50.8 мм. Для измерения энергии импульсов ТГц излучения использовался калиброванный оптоакустический детектор (ячейка Голея, GC-1D, Tydex). Длительность импульса ТГц излучения составляла 0.7 пс по уровню 0.5 от максимума интенсивности и оценивалась по временной форме ТГц

импульса, измеренной методом электрооптического детектирования [14].

Энергия импульсов ТГц излучения достигала 30 ± 3 мкДж. В фокальной плоскости радиус пятна по уровню $1/e$ от максимума интенсивности, измеряемый “ножевым” методом, составлял величину 90 ± 5 мкм. Такие параметры позволяют получить максимальную напряженность поля в центре пятна фокусировки, равной 11 ± 1 МВ/см. Изменение энергии импульса ТГц излучения осуществлялось варьированием энергии лазерной накачки кристалла DSTMS с помощью поляризационного ослабителя, состоящего из призмы Глана и полуволновой пластины. Эксперименты проводились с пленками никеля толщиной 25 нм, напыленными магнетронным методом на стеклянную подложку толщиной 150 мкм.

В используемой методике накачка-зондирование воздействие на металлическую пленку импульсом ТГц излучения осуществлялось в конфигурации со встречным зондированием образца оптическим импульсом $\lambda_2 = 620$ нм через стеклянную подложку. Время между приходом на мишень нагревающего и зондирующего импульсов варьировалось с помощью оптической линии задержки 9. Импульс ТГц излучения равномерно прогревал пленку, поскольку длина поглощения излучения $\delta = \lambda_1/4\pi k$ в никеле в этом спектральном диапазоне примерно на порядок превышает ее толщину [39]. В то же время длина поглощения зондирующего излучения λ_2 (уменьшение интенсивности в e раз) была меньше толщины пленки и составила 12 нм [40].

Зондирующий импульс после оптической линии задержки направлялся в интерферометр Майкельсона, в котором исследуемый образец служил в качестве одного из зеркал. Изображение поверхности образца с помощью микрообъектива с числовой апертурой $NA = 0.3$ переносилось на матрицу ПЗС камеры. Для предотвращения попадания на ПЗС камеру излучения с длинами волн, отличными от зондирующего, на входе камеры устанавливался узкополосный интерференционный фильтр на длину волны 620 нм. Регистрируемая камерой интерферограмма является результатом интерференции объектной и опорной волны.

При измерениях записывались три интерферограммы: *начальная* (невозмущенной поверхности до воздействия), *временная* (во время воздействия) и *финальная* (спустя несколько секунд после воздействия). После каждого воздействия мишень сдвигалась на новое место микроманипулятором. Обработка интерферограмм проводилась методом Фурье-анализа с процедурой нормировки изобра-

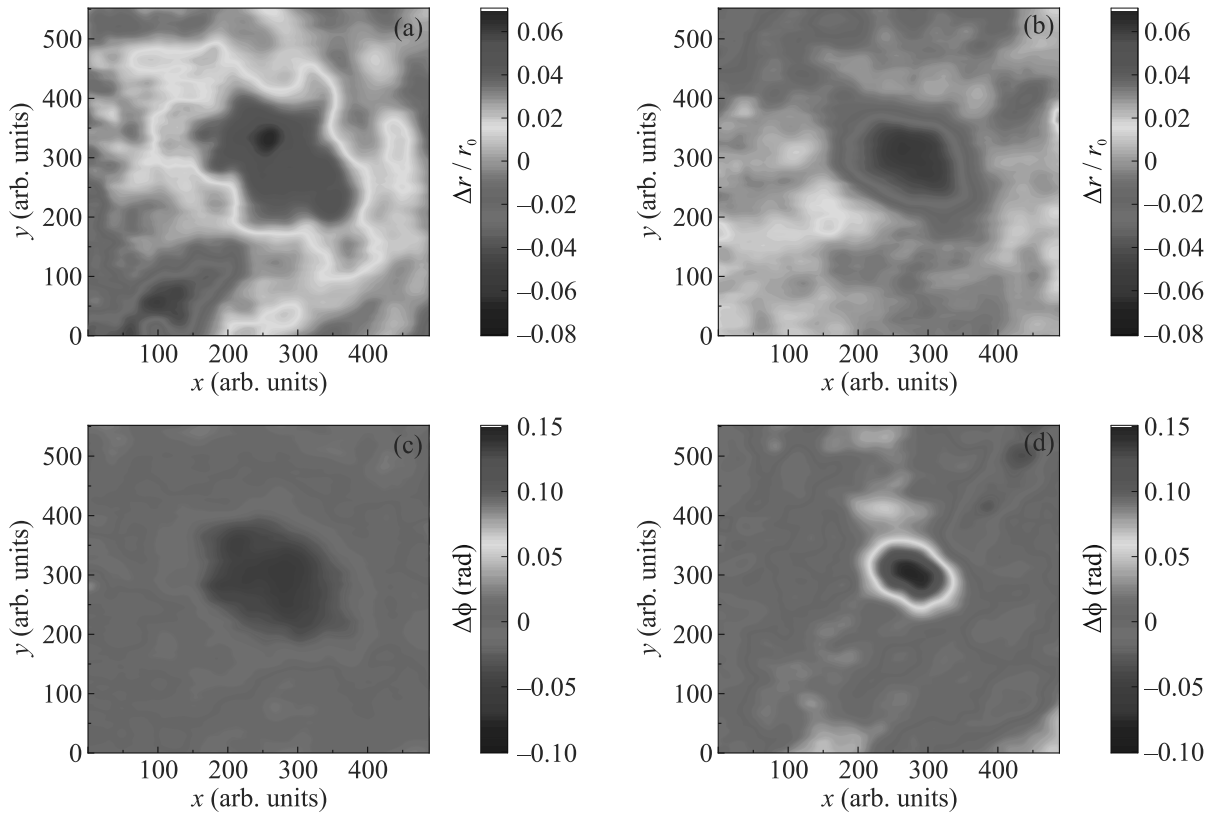


Рис. 2. (Цветной онлайн) Пространственные распределения изменения амплитуды (a), (b) и фазы (c), (d) зондирующего импульса для различных моментов времени: (a) – 0 пс; (b) и (c) – 6.7 пс; (d) – ∞ . Напряженность поля ТГц импульса – 11 МВ/см. Шкалы вертикальных и горизонтальных осей соответствуют пикселям ПЗС камеры

жений [41, 42]. Результатом обработки являлись пространственные распределения нормированного модуля $\Delta r(x, y)/r_0(x, y)$ и сдвига фазы $\Delta \varphi(x, y)$ комплексного коэффициента отражения зондирующего импульса, индуцированные воздействием импульса накачки. Здесь $\Delta r(x, y) = r(x, y) - r_0(x, y)$ и $\Delta \varphi(x, y) = \varphi(x, y) - \varphi_0(x, y)$, где $r_0(x, y)$ и $\varphi_0(x, y)$ получены при обработке *начальной* интерферограммы, $r(x, y)$ и $\varphi(x, y)$ получены при обработке *временной (или финальной)* интерферограмм. Коэффициенты отражения по полю (r_0) и интенсивности (R_0) связаны соотношением $r_0^2 = R_0$. Многократное повторение опытов с варьируемой задержкой зондирующего импульса относительно нагревающего обеспечивало построение временной динамики изменения нормированного модуля $\Delta r(t)/r_0$ и фазы $\Delta \varphi(t)$ комплексного коэффициента отражения. Погрешность измерения модуля и фазы при этом не превышала ± 0.02 и $\pm \pi/100$ рад соответственно. Временное разрешение, определяемое длительностью зондирующего импульса, составляло 100 фс. Пространственное разрешение в плоскости мишени определялось параметрами интерферометра и было

равно 2 мкм. Исследования морфологии поверхности проводились с помощью электронного сканирующего микроскопа (Tescan, Mira 3) и атомно-силового микроскопа (Veeco, Multimode V).

Результаты и их анализ. На рисунке 2 приведены пространственные распределения изменения амплитуды (a) и (b) и фазы (c) и (d) зондирующего импульса, полученные после обработки интерферограмм для различных моментов времени.

Здесь важно отметить, что изменение модуля коэффициента отражения в момент воздействия импульса накачки при $t = 0$ пс (рис. 2a) и в процессе релаксации электронов и решетки при $t = 6.7$ пс (рис. 2b) имеет разный знак.

На рисунке 3a, b приведены результаты измерений временной динамики сдвига фазы и изменения модуля комплексного коэффициента отражения зондирующего импульса по отношению ко времени прихода на образец ультракороткого ТГц импульса с напряженностью поля 11 МВ/см.

Данные получены после обработки интерферограмм при варьируемой временной задержке t между нагревающим и зондирующим импульсами в ин-

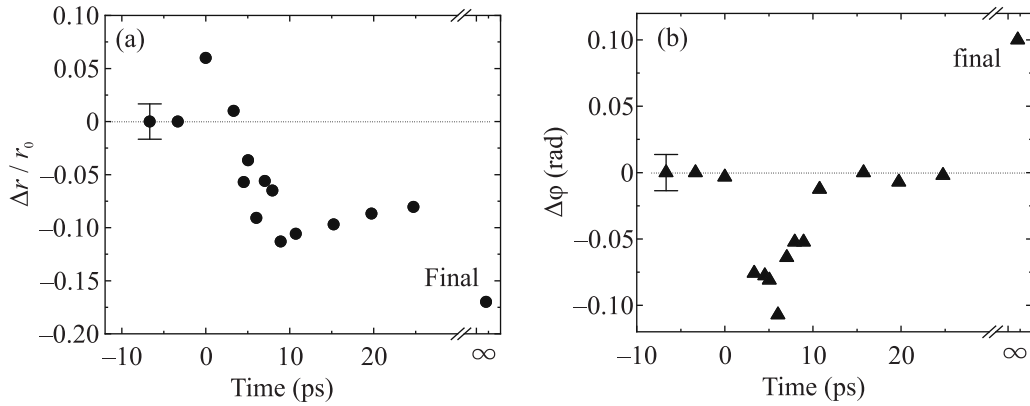


Рис. 3. Изменение амплитуды (а) и фазы (б) отраженной зондирующей волны от времени после воздействия импульса ТГц излучения с напряженностью поля 11 МВ/см

тервале от -7 пс до $+25$ пс. На графиках отложены значения $\Delta r/r_0$ и $\Delta\varphi$, измеренные в центральной части области взаимодействия с максимальной напряженностью ТГц поля, а нулевой момент времени $t = 0$ соответствует началу изменений оптических свойств. Также на графиках отображены значения измеряемых величин на бесконечности, которые соответствуют величине остаточных изменений (точки final).

Временная динамика изменения комплексного коэффициента отражения $\tilde{r} = r(t) \exp(i\varphi(t))$ играет важную роль для понимания оптического и механического отклика среды на лазерное воздействие. Коэффициент отражения $\tilde{r}$ связан с температурой T_e и T_i через комплексную диэлектрическую проницаемость среды $\tilde{\epsilon}(\omega, \nu)$, которая для d -металлов может быть описана моделью Друде–Лоренца, учитывающая вклад межзонных переходов $\epsilon_b(\omega)$ [43]:

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\nu_{\text{eff}})} + \epsilon_b(\omega), \quad (1)$$

где ω – частота излучения лазера, $\omega_p^2 = n_e e^2 / m^*$ – плазменная частота электронов (n_e , m^* – концентрация и эффективная масса электронов проводимости). Эффективная частота электрон-электронных и электрон-ионных столкновений описывается известным соотношением [10, 34]:

$$\nu_{\text{eff}} = AT_e^2 + BT_i, \quad (2)$$

Диэлектрическая проницаемость среды зависит от механизма поглощения, который может включать как межзонные, так и внутризонные переходы. Близость энергии фотонов $\hbar\omega$ к энергии межзонного перехода ΔE будет определять величину и знак изменения термоиндуцированного коэффициента отражения [37].

Ранее в ТТР экспериментах по измерению временной динамики отражения никеля в ближнем ИК диапазоне спектра [37, 44] было показано, что увеличение коэффициента отражения зондирующего импульса ($\Delta r > 0$) согласно выражению (2) в момент воздействия УКИ вызвано ростом частоты электрон-электронных столкновений в условиях неравновесного нагрева электронной подсистемы при $T_e \gg T_i$. Последующее уменьшение коэффициента отражения ниже невозмущенного значения ($\Delta r < 0$) спустя примерно 5 пс вызвано нагревом решетки на стадии выравнивания температур T_e и T_i , сопровождающееся расширением образца и уменьшением плазменной частоты ω_p в формуле (1).

Из рисунка 3а следует, что в момент воздействия ТГц импульса также наблюдается кратковременное увеличение модуля коэффициента отражения оптического диагностического импульса $\Delta r/r_0$ примерно на 6%, после чего за 5–7 пс происходит его уменьшение на 10–15% относительно невозмущенного значения.

Естественно полагать, что аналогичное поведение коэффициента отражения оптического зондирующего импульса в наших экспериментах при воздействии ТГц импульса накачки, так же как и при воздействии УКИ оптического диапазона [37], в обоих случаях обусловлено неравновесным нагревом электронной и ионной подсистем никеля и возникновением 2Т состояния с $T_e > T_i$ в течение нескольких пикосекунд.

Для ТГц излучения (центральная длина волны – 200 мкм, а частота – 1.5 ТГц) металлическую нанопленку на диэлектрической подложке следует рассматривать как субволновую структуру, учитывая также нагрев подложки. Непосредственное измерение пропускания не представлялось возможным из-за низкого уровня сигнала в связи с большими по-

терями на отражение и поглощение излучения пленочным образцом. В то же время было измерено пропускание только стеклянной подложки, составившее 15 %. Коэффициент поглощения ТГц импульса в стекле при этом составил 120 см^{-1} , а коэффициент экстинкции $k \approx 0.19$.

Оценим соотношение объемной поглощенной энергии ТГц излучения в нанопленке никеля и в стеклянной подложке по данным оптических констант. На рисунке 4 приведены зависимости (сплошные линии) для коэффициентов отражения R , пропускания T и поглощения A пленки Ni толщиной 25 нм, рассчитанные для структуры воздух/никель/стекло матричным методом (Transfer Matrix Method [45]). В данном случае для центральной длины волны ТГц импульса $\lambda_i = 200 \text{ мкм}$ использовались значения оптических констант (воздух $n_0 = 1$, $k_0 = 0$; никель $n_1 = 10$, $k_1 = 40$ [39]; стекло $n_2 = 2.25$ [46], $k_2 = 0.19$).

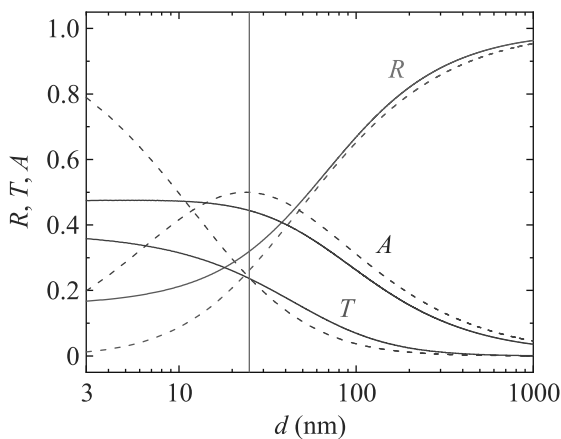


Рис. 4. (Цветной онлайн) Коэффициенты отражения R , пропускания T и поглощения A пленки никеля в зависимости от ее толщины, рассчитанные матричным методом [45] (сплошные линии) и по данным проводимости [19] (пунктир)

Соответствующие значения составили: отражение $R = 0.3$, пропускание $T = 0.24$ и поглощение $A = 0.46$. Отметим, что расчет пропускания пленки Ni хорошо согласуется с результатами измерений поглощения и пропускания металлических нанопленок [21].

В ТГц диапазоне в области нормального скин-эффекта $\delta = c/\sqrt{2\pi\sigma\omega}$ значения коэффициентов R , T и A для металлических нанопленок при нормальном падении могут быть получены из соотношений [19]:

$$R = \beta^2/(1+\beta)^2; \quad T = 1/(1+\beta)^2; \quad A = 1 - R - T. \quad (3)$$

Здесь параметр $\beta = 2\pi\sigma d/c$, где c – скорость света. Как видно из формул (3), в случае нормального скин-эффекта параметр β не зависит от частоты излучения ω , но зависит от толщины пленки d и ее проводимости σ .

На рисунке 4 приведены аналогичные зависимости (пунктир), рассчитанные по формулам (3). Наилучшее совпадение зависимостей имеет место для толщин более 20 нм при значении проводимости $\sigma = 2 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$ (система Гаусса). Эта величина примерно на два порядка ниже проводимости массива никеля, равной $\sigma = 1.46 \cdot 10^{17} \text{ с}^{-1}$ (или $1.63 \cdot 10^7 \text{ Ом}^{-1}\text{м}^{-1}$ в системе СИ [47]). Из рисунка 4 и формул (3) следует, что пленка Ni имеет максимум поглощения при критической толщине примерно 20–30 нм (значении параметра $\beta = 1$).

Известно, что рост проводимости пленки σ при фиксированной ее толщине ведет к уменьшению пропускания пленочного образца (формула Тинхама [22, 48]). При этом анализ выражений (3) показывает, что с увеличением σ растет отношение поглощение/пропускание пленки, т.е. подложка греется существенно меньше, по сравнению с металлической пленкой. Аналогичные оценки по данным проводимости массива никеля ($\sigma = 1.46 \cdot 10^{17} \text{ с}^{-1}$ [47]) и полученные матричным методом для значений оптических констант массива ($n = 219$, $k = 317$ [49]) дают величину поглощения и пропускания соответственно $A \approx 0.03$ и $T \approx 2 \cdot 10^{-4}$. При этом коэффициент отражения возрастает до $R \approx 0.97$.

Длина поглощения ТГц излучения в стекле в зависимости от частоты в диапазоне от 0.5 до 10 ТГц может варьироваться от 500 до 10 мкм по данным работ [46, 50]. Для спектра нашего импульса измеренная длина поглощения в стекле составила примерно 80 мкм. Это значение более чем на 3 порядка по величине превышает толщину пленки никеля. Таким образом, можно утверждать, что объемная поглощенная плотность энергии ТГц излучения в стекле и соответственно его нагрев будут крайне малы по сравнению с нагревом металлической пленки.

Рассмотрим поведение фазы зондирующего импульса на рис. 3б. Сдвиг фазы может быть вызван как изменением оптических констант вещества при возбуждении, так и движением поверхности мишени [41, 42]. На рисунке 3б видно, что регистрируемый сдвиг фазы зондирующего импульса $\Delta\varphi$ с течением времени меняет знак. Положительный сдвиг фазы зондирующей волны при $t = \infty$ (точка final) соответствует увеличению расстояния от объектива интерферометра до поверхности пленки и, очевидно, обусловлен наличием остаточных изменений в геометрии

рии образца после воздействия. Как будет показано ниже, эти изменения, вероятно, связаны с модификацией пленки в результате нагрева и ее отслоением от подложки на больших временах.

Время электрон-фононной релаксации в никеле $\tau_{el} \approx 1$ пс [51] меньше характерного акустического масштаба $t^* = d/c_0 \approx 4 \div 5$ пс, где $c_0 = 6$ км/с – продольная скорость звука. Поэтому быстрый квази-изохорический нагрев ТГц импульсом приводит к созданию давления в пленке. Последующая релаксация напряжений приводит к расширению пленки и генерации пикосекундного акустического импульса длительностью порядка t^* [44, 51], распространяющегося далее в подложку. Даже в случае максимального нагрева никеля до температуры плавления 1726 К, величина теплового расширения пленки Δd не должна превысить 1 нм (коэффициент линейного расширения никеля $2 \cdot 10^{-5} \text{ К}^{-1}$ [47]). Сдвиг фазы зондирующего импульса при смещении границы никель/стекло на 1 нм, равен $\Delta\varphi = 4\pi n\Delta d/\lambda_2 = 0.03$ рад. Это в несколько раз меньше регистрируемого в эксперименте отрицательного значения $\Delta\varphi$ (рис. 3b). Кроме того, из-за различия акустических импедансов сред (воздух и стекло), граничащих с металлической пленкой, ее расширение будет происходить преимущественно в направлении свободной поверхности. Поэтому влияние смещения контакта металл/подложка на изменение фазы зондирующего импульса можно считать пренебрежимо малым. Это также подтверждается отсутствием выраженных пикосекундных осцилляций на регистрируемой зависимости $\Delta\varphi(t)$, связанных с возможными реверберациями пленки после импульсного воздействия [52]. Таким образом, можно полагать, что наблюдаемый отрицательный сдвиг фазы в течение первых нескольких пикосекунд (рис. 3b) вызван в основном изменением оптических констант никеля в результате нагрева.

Для анализа процесса нагрева пленки нами было исследовано поведение комплексной диэлектрической проницаемости на длине волны зондирующего излучения $\lambda_2 = 620$ нм. Методы эллипсометрии и интерферометрии с временным разрешением при выполнении определенных условий могут применяться для изучения пикосекундной динамики диэлектрической проницаемости среды [41, 53, 54].

Из рисунка 3 и приведенных выше оценок следует, что наблюдаемое в течение первых 10 пс после воздействия изменение амплитуды и фазы в основном обусловлено изменением оптических констант, которое вызвано нагревом электронной и ионной подсистем никеля. Кроме того, выход фазы зондиру-

ющего импульса на начальное значение ($\Delta\varphi(t) \approx 0$) свидетельствует о пренебрежимо малом движении отражающей поверхности во временном интервале от 0 до 30 пс. Толщина скин-слоя зондирующего импульса, равная 12 нм на длине волны 620 нм [40], меньше толщины пленки. Импульс ТГц излучения однородно прогревает пленку никеля толщиной 25 нм (скин-слой $\delta = c/\sqrt{2\pi\sigma\omega} \approx 400$ нм). Эти факторы, а именно отсутствие движения и однородный прогрев зондируемого слоя позволяют на основании измерений комплексного коэффициента отражения зондирующего импульса и формул Френеля получить информацию о динамике комплексной диэлектрической проницаемости никеля на длине волны 620 нм после воздействия мощного импульса ТГц излучения.

В случае нормального падения излучения комплексный коэффициент отражения мишени связан с комплексным показателем преломления среды $\tilde{n} = n - ik$ посредством соотношения [41, 53]:

$$\tilde{r} = re^{i\varphi} = \frac{\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2}{\tilde{n}_1 + \tilde{n}_2}, \quad (4)$$

где $\tilde{n}_1 = n_1 - ik_1$ – комплексный показатель преломления среды 1 (стекла), а $\tilde{n}_2 = n_2 - ik_2$ – комплексный показатель преломления среды 2 (металлической пленки). Подставляя $\tilde{n}_1 = n_1 - ik_1$ и $\tilde{n}_2 = n_2 - ik_2$ в выражение (4), после преобразований получаем следующие формулы для расчета модуля r и фазы φ комплексного коэффициента отражения:

$$r = \left(\frac{n_1 - n_2}{(n_1 + n_2)^2 + (k_1 + k_2)^2} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (5)$$

$$\varphi = \pi + \arctg \frac{2(n_1 k_2 - n_2 k_1)}{n_1^2 - n_2^2 + k_1^2 - k_2^2}. \quad (6)$$

Численно решая нелинейную систему уравнений (5), (6) относительно n_2 и k_2 для каждой пары значений амплитуды r и фазы φ , получаем искомые данные об оптических константах исследуемого вещества. Здесь на длине волны зондирующего излучения 620 нм действительная и мнимая части комплексного показателя преломления стекла взята равной $n_1 = 1.5$ и $k_1 = 0$, а значения оптических констант невозмущенного никеля – $n_{20} = 1.99$ и $k_{20} = 4.04$ [40].

Действительная и мнимая части показателя преломления связаны с комплексной диэлектрической проницаемостью среды посредством соотношений:

$$\varepsilon_1 = n^2 - k^2; \quad \varepsilon_2 = 2nk. \quad (7)$$

На рисунке 5 представлена временная зависимость комплексной диэлектрической проницаемости

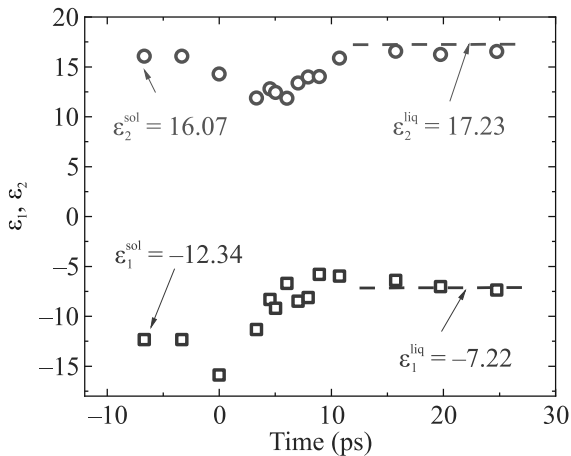


Рис. 5. (Цветной онлайн) Изменение действительной ϵ_1 (синие квадраты) и мнимой ϵ_2 (красные кружки) части диэлектрической проницаемости от времени на длине волны 620 нм. Пунктиром показаны значения комплексной диэлектрической проницаемости расплава никеля из работы [55]. Напряженность поля ТГц импульса 11 МВ/см

пленки никеля, рассчитанная по формулам (5)–(7), в приближении отсутствия смещения поверхности во временном интервале от 0 до 30 пс.

Действительная часть комплексной диэлектрической проницаемости в момент воздействия увеличивается по абсолютной величине, после чего, примерно спустя 5–10 пс, приближается к значению диэлектрической проницаемости расплава Ni, равному $\epsilon_1^{\text{liq}} = -7.22$ на длине волны 620 нм по данным работы [55]. При этом мнимая часть диэлектрической проницаемости ϵ_2 , ответственная за поглощение излучения, после воздействия уменьшается относительно первоначального значения. Это свидетельствует о кратковременном индуцированном увеличении пропускания (просветлении) пленки Ni в оптическом диапазоне на временах 10^{-12} – 10^{-11} с. Такое поведение комплексной диэлектрической проницаемости на длине волны 620 нм свидетельствует о сильном возбуждении электронов *s*- и *d*-зон никеля в первые пикосекунды после воздействия импульса ТГц излучения с последующим нагревом решетки и началом ее плавления на временах $\geq 10^{-11}$ с.

Согласно данным моделирования из работ [44, 56] при нагреве УКИ вблизи порога плавления Ni температура электронной подсистемы T_e может достигать 3–6 К.

На рисунке 6 приведены результаты исследований поверхности образца никеля толщиной 25 нм до и после воздействия ТГц излучения с помощью СЭМ.

Результаты исследований на СЭМ не выявили нарушения сплошности и разрывов в пленке. В то же

время ее поверхность является сильно модифицированной в результате плавления, что согласуется с измерениями комплексной диэлектрической проницаемости. При этом плавление, по-видимому, носит локальный характер. Об этом свидетельствует образование на поверхности после затвердевания расплава каплевидных образований размером от 50 до 200 нм, а также заметное увеличение ее шероховатости. По данным АСМ измерений после воздействия величина шероховатости модифицированной поверхности R_a возросла с 1.1 до 25 нм. Известно, что для нанопленок имеет место так называемый эффект деветинга [38], состоящий в стремлении минимизировать поверхностную энергию при нагреве путем образования островков и капель.

Увеличение шероховатости поверхности, по-видимому, является причиной уменьшения коэффициента отражения модифицированной пленки (точка final на рис. 3а). Кроме того, по данным измерений фазы (точка final на рис. 3б) имеет место деламинация пленки. Причиной этого может являться возникновение растягивающих напряжений на контакте металл/стекло из-за различия акустических импедансов этих сред [52], а также ухудшение адгезии модифицированной пленки. При этом максимальная величина сдвига фазы в центре области взаимодействия достигает $\Delta\varphi = 0.15$ рад, который соответствует величине смещения отражающей поверхности на величину $\Delta z = \Delta\varphi n_1 \lambda / 4\pi \approx 11$ нм, соизмеримой с величиной шероховатости. Это может быть связано с отслоением пленки, или модификацией морфологии контакта пленка/стекло.

Закключение. В настоящей работе методом фемтосекундной интерференционной микроскопии с временным ($\sim 10^{-13}$ с) разрешением исследована пикосекундная динамика изменения комплексного коэффициента отражения и диэлектрической проницаемости на длине волны 620 нм для пленки никеля толщиной 25 нм на стеклянной подложке, нагреваемой субпикосекундным импульсом ТГц излучения с напряженностью поля 11 МВ/см. Результаты измерений показали увеличение коэффициента отражения в видимой области в момент воздействия, связанное с сильным возбуждением электронной подсистемы никеля импульсом ТГц излучения. Новым результатом является экспериментально наблюдаемое двухтемпературное состояния металла с $T_e > T_i$ в условиях нагрева субпикосекундным импульсом излучения ТГц диапазона спектра. Поведение комплексной диэлектрической проницаемости свидетельствует о начале плавления пленки спустя 5–10 пс после воздействия. При этом максимальная температура

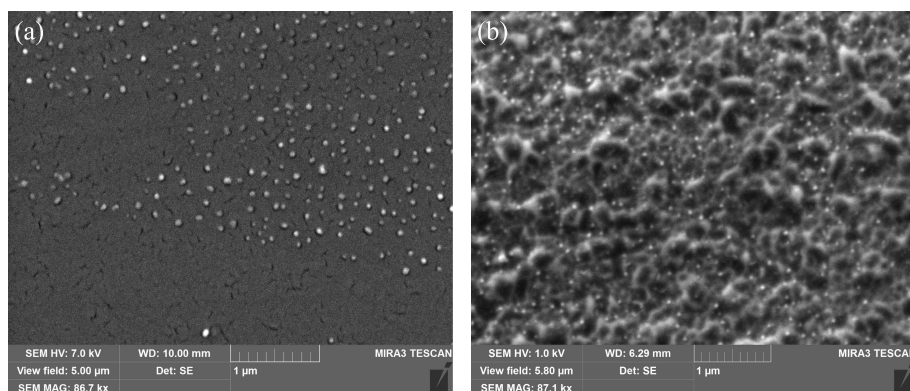


Рис. 6. Изображения (СЭМ) фрагмента пленки никеля (а) – до воздействия; (б) – после однократного воздействия ТГц импульса с напряженностью поля 11 МВ/см

электронной подсистемы никеля вблизи порога плавления может достигать нескольких тысяч градусов. Результаты исследований морфологии модифицированной поверхности пленки на СЭМ и АСМ, а также интерферометрических измерений, указывают на частичное локальное плавление пленки с образованием застывших каплевидных наноразмерных образований на поверхности, а также о возможном нарушении контакта с подложкой в области воздействия. При этом макроскопических разрушений пленки при однократном воздействии в рассматриваемых условиях не наблюдалось.

Полученные в настоящей работе результаты могут быть использованы для изучения механизма воздействия мощных сверхкоротких импульсов ТГц излучения на металлические нанопленки, применяемые в качестве силовых элементов оптики ТГц диапазона и материалов спинтроники.

Авторы статьи признательны А. А. Фролову за полезные замечания.

Финансирование работы. Данная работа была выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (Соглашение с Федеральным государственным бюджетным учреждением науки Объединенный институт высоких температур Российской академии наук #075-00270-24-00) на оборудовании Центра коллективного пользования “Лазерный фемтосекундный комплекс” и уникальной научной установке “Лазерный тераваттный фемтосекундный комплекс” Объединенного института высоких температур Российской академии наук.

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

1. C. Vicario, M. Jazbinsek, A.V. Ovchinnikov,

- O.V. Chefonov, S.I. Ashitkov, M.B. Agranat, and C.P. Hauri, *Opt. Express* **23**, 4573 (2015).
2. M. Shalaby and C.P. Hauri, *Nat. Commun.* **6**, 5976 (2015).
3. C. Vicario, A. Ovchinnikov, S. Ashitkov, M. Agranat, V. Fortov, and C. Hauri, *Opt. Lett.* **39**, 6632 (2014).
4. Б.В. Румянцев, А.В. Пушкин, Д.З. Сулейманова, Н.А. Жидовцев, Ф.В. Потемкин, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 571 (2023).
5. А.В. Овчинников, О.В. Чефонов, М.Б. Агранат, К.А. Гришунин, Н.А. Ильин, Р.В. Писарев, А.В. Кимель, А.М. Калашникова, *Письма в ЖЭТФ* **104**, 467 (2016).
6. O. Chefonov, A. Ovchinnikov, S. Romashevskiy, X. Chai, T. Ozaki, A. Savel'ev, M. Agranat, and V. Fortov, *Opt. Lett.* **42**, 4889 (2017).
7. X. Chai, X. Ropagnol, A. Ovchinnikov, O. Chefonov, A. Ushakov, C.M. Garcia-Rosas, E. Isgandarov, M. Agranat, T. Ozaki, and A. Savel'ev, *Opt. Lett.* **43**, 5463 (2018).
8. M. Shalaby, C. Vicario, and C.P. Hauri, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 182903 (2016).
9. В.В. Герасимов, Б.А. Князев, П.Д. Рудыч, В.С. Черкасский, *Приборы и техника эксперимента* **50**, 103 (2007).
10. S.G. Bezhanov and S.A. Uryupin, *Opt. Lett.* **43**, 3069 (2018).
11. С.В. Сазонов, Н.В. Устинов, *Письма в ЖЭТФ* **112**, 30 (2020).
12. O.V. Chefonov, A.V. Ovchinnikov, M.B. Agranat, V.E. Fortov, E.S. Efimenko, A.N. Stepanov, and A.B. Savel'ev, *Phys. Rev. B* **98**, 165206 (2018).
13. О.В. Чефонов, А.В. Овчинников, С.А. Евлашин, М.Б. Агранат, *Письма в ЖЭТФ* **45**, 41 (2019).
14. O.V. Chefonov, A.V. Ovchinnikov, S.A. Evlashin, and M.B. Agranat, *J. Infrared Millim. Terahertz Waves* **39**, 1047 (2018).

15. M. B. Agranat, O. V. Chefonov, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, V. E. Fortov, and P. S. Kondratenko, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 085704 (2018).
16. O. V. Chefonov, A. V. Ovchinnikov, D. S. Sitnikov, and M. B. Agranat, *High Temperature* **57**, 137 (2019).
17. V. S. Makin and R. S. Makin, *J. Optical Technology* **87**, 3 (2020).
18. Г. В. Розенберг, *Оптика тонкослойных покрытий*, Физматгиз, М. (1958), 570 с.
19. S. Fahy, C. Kittel, and S. G. Louie, *Am. J. Phys.* **56**(11), 989 (1988).
20. A. Hadni and X. Gerbaux, *Infrared Phys.* **30**(6), 465 (1990).
21. D. Zhou, E. P. J. Parrott, D. J. Paul, and J. A. Zeitler, *J. Appl. Phys.* **104**(5), 053110 (2008).
22. K. Neeraj, A. Sharma, M. Almeida, P. Matthes, F. Samad, G. Salvan, O. Hellwig, and S. Bonetti, *Appl. Phys. Lett.* **120**, 102406 (2022).
23. N. Acharyya, V. Sajeev, S. Rane, S. Karmakar, and D. R. Chowdhury, *J. Appl. Phys.* **134**, 033102 (2023).
24. V. L. Ginzburg and V. P. Shabanskii, *Dokl. Akad. Nauk SSSR* **100**, 445 (1955).
25. М. И. Каганов, И. М. Лифшиц, Л. В. Танатаров, *ЖЭТФ* **31**, 232 (1956).
26. E. S. Borovik, *Dokl. Akad. Nauk SSSR* **91**, 771 (1953).
27. С. И. Анисимов, Б. Л. Капелиович, Т. Л. Перельман, *ЖЭТФ* **66**, 776 (1974).
28. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, Ф. Ф. Самохин, *УФН* **187**, 159 (2017).
29. И. А. Артюков, Д. А. Заярный, А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, С. В. Макаров, П. Н. Салтуганов, *Письма в ЖЭТФ* **99**, 54 (2014).
30. С. А. Ромашевский, В. А. Хохлов, С. И. Ашитков, В. В. Жаховский, Н. А. Иногамов, П. С. Комаров, А. Н. Паршиков, Ю. В. Петров, Е. В. Струлева, П. А. Цыганков, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 311 (2021).
31. A. J. Schmidt, *Annu. Rev. Heat Transfer* **16**, 159 (2013).
32. J. Hohlfeld, S.-S. Wellershoff, J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, and E. Matthias, *Chem. Phys.* **251**, 237 (2000).
33. C. Guo, G. Rodriguez, A. Lobad, and A. J. Taylor, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4493 (2000).
34. P. M. Norris, A. P. Caffrey, R. J. Stevens, J. M. Klopff, J. T. McLeskey Jr., and A. N. Smith, *Rev. Sci. Instrum.* **74**, 400 (2003).
35. E. Radue, J. A. Tomko, A. Giri, J. L. Braun, X. Zhou, O. V. Prezhdo, E. L. Runnerstrom, J. P. Maria, and P. E. Hopkins, *ACS Photonics* **5**, 4880 (2018).
36. Н. А. Иногамов, В. А. Хохлов, С. А. Ромашевский, Ю. В. Петров, В. В. Жаховский, С. И. Ашитков, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 107 (2023).
37. P. E. Hopkins, J. M. Klopff, and P. M. Norris, *Appl. Optics* **46**, 2076 (2007).
38. C. V. Thompson, *Annu. Rev. Mater. Res.* **42**, 399 (2012).
39. F.-Y. Ma, J.-P. Su, Q.-X. Gong, J. Yang, Y.-L. Du, M.-T. Guo, and B. Yuan, *Chin. Phys. Lett.* **28**, 097803 (2011).
40. P. B. Johnson and R. W. Christy, *Phys. Rev. B* **9**, 5056 (1974).
41. V. V. Temnov, K. Sokolovski-Tinten, P. Zhou, and D. von der Linde, *J. Opt. Soc. Am. B* **23**, 1954 (2006).
42. М. Б. Агранат, Н. Е. Андреев, С. И. Ашитков, М. Е. Вейсман, П. Р. Левашов, А. В. Овчинников, Д. С. Ситников, В. Е. Фортов, К. В. Хищенко, *Письма в ЖЭТФ* **85**, 328 (2007).
43. E. Silaeva, L. Saddier, and J.-P. Colombier, *Appl. Sci.* **11**, 9902 (2021).
44. В. А. Хохлов, С. А. Ромашевский, С. И. Ашитков, Н. А. Иногамов, *Письма в ЖЭТФ* **120**, 550 (2024).
45. J. Bonse, K.-W. Brzezinka, and A. J. Meixner, *Appl. Surf. Sci.* **221**, 215 (2004).
46. N. J. Tostanoski and S. K. Sundaram, *Sci. Rep.* **13**(1), 1 (2003).
47. И. К. Кикоин, *Таблица физических величин*, Спр., Атомиздат, М. (1976), 177 с.
48. N. Laman and D. Grischkowsky, *Appl. Phys. Lett.* **93**(5), 051105 (2008).
49. M. A. Ordal, R. J. Bell, R. W. Alexander, Jr., L. L. Long, and M. R. Querry, *Appl. Optics* **26**(4), 744 (1987).
50. Н. А. Винокуров, Б. А. Князев, Г. Н. Кулипанов, А. Н. Матвеев, В. М. Попик, В. С. Черкасский, М. А. Щеглов, *ЖТФ* **77**(7), 91 (2007).
51. T. Saito, O. Matsuda, and O. Wright, *Phys. Rev. B* **67**, 205421 (2003).
52. V. A. Khokhlov, N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, V. V. Shepelev, and D. K. Il'nitsky, *J. Phys.: Conf. Ser.* **653**, 012003 (2015).
53. С. И. Ашитков, П. С. Комаров, Е. В. Струлева, А. А. Юркевич, М. Б. Агранат, *ТБТ* **54**, 957 (2016).
54. J. Winter, S. Rapp, M. Schmidt, and H. P. Huber, *Appl. Surf. Sci.* **417**, 2 (2017).
55. S. Krishnan, K. J. Yugawa, and P. C. Nordine, *Phys. Rev. B* **55**, 8201 (1997).
56. D. S. Ivanov and L. V. Zhigilei, *Phys. Rev. B* **68**, 064114 (2003).