

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ МОЩНОГО ТЕРАГЕРЦОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ С МЕТАЛЛИЧЕСКИМИ ПЛЕНКАМИ

INTERACTION OF HIGH-POWER TERAHERTZ RADIATION WITH METALLIC FILMS

О. В. Чешонов, М. В. Агранат, А. В. Овчинников, С. И. Ашитков, П. С. Кондратенко, В. Е. Фортов

O. V. Chefonov, M. V. Agranat, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, P. S. Kondratenko, V. E. Fortov

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Объединенный институт высоких температур Российской академии наук, г. Москва

Joint Institute for High Temperatures of the Russian Academy of Sciences, Moscow

Впервые экспериментально получено разрушение тонкой пленки алюминия на стеклянной подложке при одноимпульсном и многоимпульсном воздействии терагерцового излучения в спектральном диапазоне 1–3 ТГц. Измерен порог разрушения пленки по плотности энергии терагерцового импульса для однократного воздействия и предложены механизмы разрушения для разных режимов воздействия.

Damage in a thin aluminum film on a glass substrate produced by a single terahertz pulse and multiple pulses in the frequency range 1–3 THz is experimentally obtained for the first time. The single-pulse damage threshold (terahertz fluence) of the film is measured and damage mechanisms induced by a single terahertz pulse and multiple pulses are proposed.

Появление мощных источников когерентного импульсного терагерцового излучения и непрерывный прогресс в этой области позволяют прогнозировать в ближайшем будущем широкое использование подобной техники для решения ряда фундаментальных и прикладных задач. Наиболее высокую напряженность электрического поля импульса терагерцового излучения в диапазоне 1–10 ТГц (до 100 МВ/см) получают с помощью нелинейного преобразования инфракрасных фемтосекундных лазерных импульсов тераваттной мощности излучения в органических кристаллах [1, 2]. Терагерцовые импульсы с такими параметрами могут стать эффективным инструментом для открытия новых направлений, таких как силовое воздействие терагерцового излучения на вещество, сверхбыстрые фазовые переходы, модификация поверхностного слоя в различных материалах.

В последнее время появилось несколько работ, в которых наблюдались подобные явления. В работах [3, 4] на пикосекундных и фемтосекундных временных масштабах был показан переход диэлектрика диоксида ванадия в метастабильное металлическое состояние под действием электрического поля терагерцового импульса с напряженностью 1–15 МВ/см. В работе [3] отмечено, что при увеличении поля от 1 МВ/см до

4 МВ/см за счет локального усиления в зазоре структуры метаматериала, помимо металлизации диоксида ванадия внутри структуры, происходит его необратимое повреждение, индуцированное электрическим полем напряженностью около 4 МВ/см. В работе [5] сообщалось о наблюдении растрескивания тонкой пленки кобальта при многократном воздействии терагерцового импульса. В работе [6] авторы исследовали магнитный отклик тонкой пленки никеля под действием терагерцового импульса с напряженностью поля 33 МВ/см в нерезонансных условиях. Экспериментально было показано, что при плотности энергии терагерцового излучения более 89 мДж/см^2 происходит не только необратимая потеря магнитных свойств никеля, но также наблюдается модификация и повреждение тонкой пленки (вплоть до разрушения при многократном воздействии). Характер разрушения на пленках кобальта и никеля резко отличается. Следует отметить, что механизм разрушения тонких металлических пленок терагерцовыми импульсами в настоящее время не исследован и требует тщательного изучения.

В докладе мы сообщаем о разрушении пленок алюминия, толщиной меньше глубины скин-слоя, при однократном и многократном их облучении импульсами терагерцового излучения [7].

Генерация импульсов терагерцевого излучения осуществлялась методом оптического выпрямления фемтосекундных лазерных импульсов хром-форстеритовой лазерной системы [1] с длиной волны излучения 1240 нм и длительностью 100 фс в нелинейном органическом кристалле DSTMS толщиной 440 мкм и диаметром 8 мм [2]. Эксперименты проводились в закрытом боксе с относительной влажностью воздуха менее 2%. Для фильтрации излучения лазерной накачки на длине волны 1240 нм после кристалла DSTMS был установлен отрезающий терагерцевый фильтр (LPF8.8-47, Tydex), не пропускающий длины волн меньше 34 мкм. Коэффициент ослабления фильтра на длине волны излучения 1240 нм составлял величину не менее 10^5 .

Для уменьшения расходимости пучок терагерцевого излучения расширялся с помощью телескопа 6:1, состоящего из двух внеосевых параболических зеркал с эффективным фокусным расстоянием 25,4 мм и 152,4 мм. Фокусировка терагерцевого пучка на образец производилась внеосевым параболическим зеркалом диаметром 50,8 мм с фокусным расстоянием 50,8 мм. Экспериментальная схема показана на рис. 1.

Энергия импульсов терагерцевого излучения измерялась с помощью калиброванного оптоакустического детектора (ячейка Голя, Tydex) и составляла около 75 мкДж на поверхности образца. Длительность импульса терагерцевого излучения измерялась с помощью автокоррелятора первого порядка и составила около 700 фс по уровню 0,5 от максимума интенсивности.

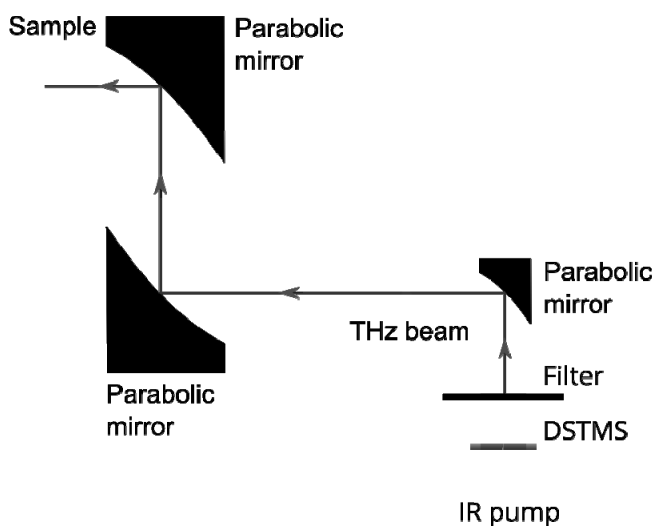


Рис. 1. Схема экспериментов

На рис. 2 представлен спектр терагерцевого излучения, полученный методом Фурье преоб-

ращения временной формы терагерцевого импульса, измеренной методом электрооптического детектирования. В качестве детектора использовался электрооптический кристалл GaP (110) толщиной 100 мкм, закрепленный на подложке из кристалла GaP (100) толщиной 2 мм.

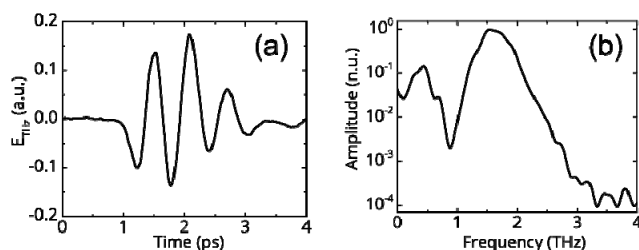


Рис. 2. Временная форма напряженности электрического поля (а) и спектр (б) терагерцевого импульса

Впервые нам удалось получить разрушение алюминиевой пленки после однократного воздействия терагерцевого импульса. В эксперименте использовались напыленные на стеклянную подложку (180 мкм) пленки алюминия толщиной 20 нм, что значительно меньше глубины скин-слоя (для Al глубина скин-слоя на частоте 1 ТГц составляет величину около 60 нм [8]).

Изображения характерной морфологии области разрушения, полученные с помощью сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) при различных потоках энергии терагерцевого импульса F , представлены на рис. 3.

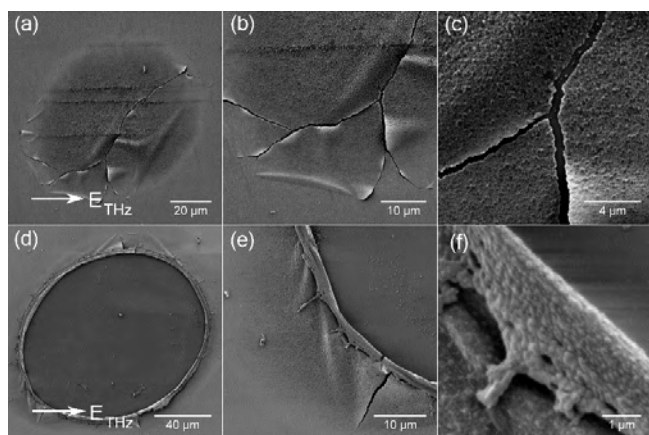


Рис. 3. СЭМ изображения отверстий и фрагментов краев отверстий в алюминиевой пленке после однократного воздействия импульса терагерцевого излучения: (а, б, с) – $F = 140$ мДж/см²; (д, е, ф) – $F = 300$ мДж/см². Стрелками показано направление вектора напряженности электрического поля терагерцевого импульса

На рис. 3 (а, б, с) представлено СЭМ-изображение и фрагменты краев области воздействия

терагерцового импульса с плотностью энергии чуть ниже порога разрушения. Хорошо видно, что произошло отслаивание и растрескивание пленки, а также модификация ее поверхности в области воздействия. При увеличении потока энергии терагерцового импульса видно (рис. 3 (d, e, f)), что в центральной части пленка полностью удалена с поверхности стекла. Отличительной особенностью является наличие бортика шириной примерно 1–2 мкм по границе разрушения, представляющего собой завернутый край пленки. Также вокруг границы разрушения наблюдается модифицированная область, в которой поверхность пленки имеет большую шероховатость по сравнению с исходной поверхностью.

На рис. 4 приведены результаты измерений порога разрушения Al пленки после однократного воздействия терагерцового импульса по падающему потоку энергии F_a . Порог разрушения в режиме однократного воздействия определялся по известной методике [9] путем измерения зависимости радиуса r области разрушения (отверстие в пленке) от падающей энергии терагерцового импульса E .

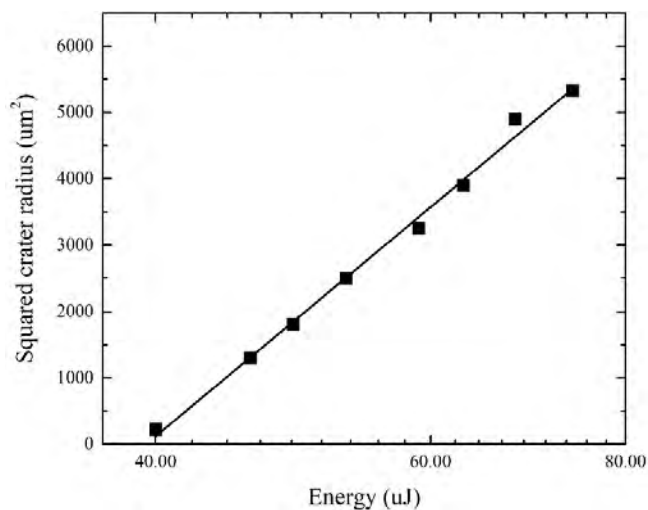


Рис. 4. Определение порога разрушения Al пленки толщиной 20 нм после однократного воздействия импульса терагерцового излучения; точки – экспериментальные значения, прямая – их линейная аппроксимация

Результаты измерений (точки) на рис. 4 хорошо аппроксимируются линейной зависимостью. Это свидетельствует о явно выраженном пороговом характере разрушения, а также высокой однородности используемого образца. Измеренные значения радиуса пучка по уровню $1/e$ и порога разрушения по падающей плотности энергии, со-

ответственно, составили $r_0 \approx 90$ мкм и $F_a \approx 150 \pm 10$ мДж/см².

Был исследован характер разрушения при многократном воздействии терагерцовыми импульсами на алюминиевую пленку с плотностью энергии ниже и выше порога однократного разрушения (рис. 5).

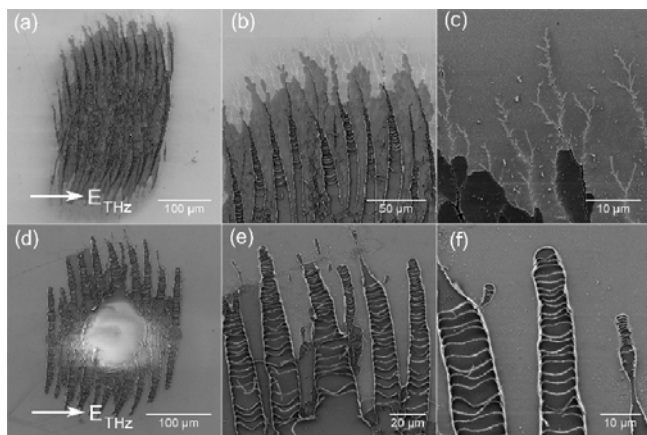


Рис. 5. СЭМ изображения области воздействия (a, d) и фрагменты (b, c, e, f) характерных разрушений после многократного воздействия терагерцовых импульсов с различной плотностью энергии: a, b, c – $F_0 = 80$ мДж/см², $N = 600$; d, e, f – $F_0 = 240$ мДж/см², $N = 60$. Здесь F_0 – плотность энергии в центре фокального пятна; N – количество импульсов. Стрелками показано направление вектора напряженности электрического поля терагерцового импульса

Отличительными особенностями разрушения при многократном воздействии являются следующие:

а) Разрушения возникают при многократном воздействии в области, где плотность энергии ниже порога однократного разрушения F_a . Плотность энергии терагерцового излучения в периферийной части пятна, где еще наблюдаются разрушения, примерно в 20 раз ниже значения F_a .

б) Разрушения формируются в виде вытянутых каналов нарушения сплошности металлической пленки, ориентированных перпендикулярно вектору напряженности электрического поля терагерцового излучения.

в) Длина каналов растет с ростом числа импульсов N , а ширина уменьшается по мере удаления от центра к периферии пятна. Максимальная ширина каналов в центральной части области воздействия достигает 10 мкм и уменьшается до субмикронного размера на периферии.

Мы предполагаем, что образование повреждения (отверстия) в тонкой пленке при однократном воздействии происходит в результате поглощения

энергии терагерцового импульса электронами проводимости, появлением горячих электронов, которые передают свою энергию решетке и нагревают ее. Нагрев решетки может после окончания импульса приводить к разрушению пленки вследствие теплового расширения или плавления и абляции.

Анализируя характер повреждения при пороговых потоках энергии (рис. 2 а, б, с) мы считаем, что причиной разрушения является тепловое расширение нагретой пленки. Механизм разрушения представляется следующим. Из-за различия в акустических импедансах на границах пленки центр масс пленки приобретает импульс в направлении от подложки. Кроме того, возникающая волна растягивающих напряжений способствует нарушению адгезии [10]. В результате превышения прочности сцепления пленки с поверхностью подложки происходит ее отслаивание. При увеличении потока энергии нагревающего импульса пленка в процессе разлета разрушается с образованием валика вблизи границы отверстия.

Можно грубо оценить внутреннее давление в пленке, нагретой до температуры плавления, с помощью соотношения $P \approx \Gamma c \rho (T_m - T_0)$, где $\Gamma = 2$ – параметр Грюнайзена, $c = 0,88$ Дж/(гград), $\rho = 2,7$ г/см³ – теплоемкость и плотность алюминия, соответственно, $T_m = 930$ К – температура плавления алюминия, $T_0 = 300$ К – начальная температура. Получаем $P \sim 1$ ГПа. Прочность сцепления для пленки, определенная методом отрыва, составляет величину около 100 МПа [11]. Отсюда следует, что при температуре ниже температуры плавления может произойти отслаивание и растрескивание пленки.

Характер разрушения пленки алюминия при многократном воздействии ТГц импульса с интенсивностью ниже порога однократного разрушения сложно однозначно интерпретировать. Качественно процесс разрушения можно представить в следующем виде. Терагерцовый импульс в центре пятна фокусировки (в области максимальной напряженности поля) инициирует создание микротрещины путем образования механических напряжений. Можно предположить, что в дальнейшем при многократном облучении в каждом следующем импульсе происходит усиление поля в области микротрещины. Это приводит к росту микротрещины в продольном направлении перпендикулярно вектору напряженности электрического поля и увеличению толщины в поперечном направлении. Рост микротрещин сопровождается абляцией пленки в микроробластях, подобно механизму однократного разрушения.

Мы считаем, что механизм инициирования процесса образования микротрещин основан на ранее не наблюдавшемся явлении электрострикции в тонких металлических пленках.

За время действия двухпериодного (в нашем случае) терагерцового импульса на всю толщину пленки проникает поле, которое будем считать постоянным (с изменением знака через половину периода) и вызывающим ток. Плотность тока определяется законом Ома со статической проводимостью $\vec{J} = \sigma \vec{E}$. Оценка для плотности заряда, вытекающая из уравнения непрерывности $\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div } \vec{j} = 0$, дает $\rho \sim \sigma E \tau / r_0$, где $E = |\vec{E}|$, τ – время, сопоставимое или меньше с длительностью терагерцового импульса.

Отнесенная к единице объема сила, действующая на заряд со стороны поля $|\vec{E}|$, имеет порядок $|\vec{E}| \sim \frac{\sigma \tau}{r_0} E \vec{E}$. Соответственно, возникает на-

пряжение на разрыв $\Sigma \sim \frac{\Lambda}{r_0} \sigma \tau E^2$, параллельное напряженности электрического поля терагерцового импульса. Λ – порядок величины расстояния между соседними, перпендикулярными полю, линейными повреждениями пленки. Полагая $\Lambda / r_0 \sim 10^{-2}$, $\tau \sim 10^{-12}$ с, $E \sim 10^4$ CGSE (~ 3 МВ/см) и принимая во внимание, что для Al проводимость $\sigma \sim 10^{17}$ с⁻¹, приходим к оценке $\Sigma \sim 10^4$ МПа. Табличное значение предела статической прочности на разрыв для Al составляет величину 50 МПа [12]. Учитывая, что оценочное значение $\Sigma \sim 10^4$ МПа соответствует динамической нагрузке в промежутке времени $\tau \sim 10^{-12}$ с, превышение его в сравнении со значениями пределов статической прочности можно считать правдоподобным.

В заключение, впервые получено разрушение тонкой металлической пленки при однократном воздействии терагерцового импульса длительностью 700 фс, приводящее к абляции и образованию отверстий. Измерен порог образования разрушения (абляции пленки), составивший величину 150 мДж/см² и напряженностью поля в центре пятна фокусировки порядка 10 МВ/см по падающей интенсивности излучения. Наблюдается отслаивание и растрескивание пленки в области воздействия при потоках энергии вблизи порога разрушения. Показано, что механизм разрушения пленки алюминия при однократном воздействии терагерцового импульса обусловлен расширением

нагретой пленки, приводящим к превышению прочности сцепления пленки с поверхностью подложки, растрескиванию и абляции.

Характер повреждений при многократном воздействии терагерцового импульса с интенсивностью ниже порога разрушения резко отличается от характера однократного разрушения. Повреждения представляют собой группу трещин, вытянутых перпендикулярно направлению электрического поля в плоскости пленки. Предложен механизм инициирования таких трещин, основанный на явлении электрострикции в тонких металлических пленках. Разработка модели такого разрушения требует дальнейших экспериментальных и теоретических исследований.

Эксперименты были проведены на уникальной научной установке «Тераваттный фемтосекундный лазерный комплекс» Объединенного института высоких температур РАН при поддержке Российского научного фонда, проект № 17-19-01261.

Список литературы

1. Agranat M. B., Ashitkov S. I., Ivanov A. A., Konyashchenko A. V., Ovchinnikov A. V., Fortov V. E. Terawatt femtosecond Cr : forsterite laser system // *Quantum Electronics*. 2004. Vol. 34, N 6, P. 506–508.

2. Vicario C., Ovchinnikov A. V., Ashitkov S. I., Agranat M. B., Fortov V. E., and Hauri C. P. Generation of 0,9-mJ THz pulses in DSTMS pumped by a Cr:Mg₂SiO₄ laser // *Optics Letters*. 2014. Vol. 39, N 23, P. 6632–6635.

3. Liu M. et al. Terahertz-field-induced insulator-to-metal transition in vanadium dioxide metamaterial // *Nature*. 2012. Vol. 487, N 7407, P. 345–348.

4. Mayer B. et al. Tunneling breakdown of a strongly correlated insulating state in VO₂ induced by intense multiterahertz excitation // *Phys. Rev. B*. 2015. Vol. 91, N 23, P. 235113.

5. Shalaby M., Vicario C., Hauri C. P. The terahertz frontier for ultrafast coherent magnetic switching: Terahertz-induced demagnetization of ferromagnets // arXiv:1506.05397 [physics.optics].

6. Shalaby M., Vicario C., Hauri C. P. Low frequency terahertz-induced demagnetization in ferromagnetic nickel // *Appl. Phys. Lett.* 2016. Vol. 108, N 18, P. 182903.

7. Agranat M. B., Chefonov O. V., Ovchinnikov A. V., Ashitkov S. I., Fortov V. E., Kondratenko P. S. Damage in a Thin Metal Film by High-Power Terahertz Radiation // *Phys. Rev. Lett.* 2018. Vol. 120, N 8, P. 085704.

8. Gerasimov V. V., Knyzev B. A. et al. Fresnel reflection in optical elements and detectors for the terahertz range // *Instruments and Experimental Techniques*. 2007. Vol. 50, N 4, P. 524–529.

9. Liu J. M. Simple technique for measurements of pulsed Gaussian-beam spot sizes // *Optics Letters*. 1982. Vol. 7, N 5, P. 196–198.

10. Inogamov, N. A.; Zhakhovskii, V. V. Formation of nanojets and nanodroplets by an ultrashort laser pulse at focusing in the diffraction limit // *Jetp Lett.* 2014. Vol. 100, N 1, P. 4–10.

11. Vianco P. T., Sifford C. H., Romero J. A. Resistivity and adhesive strength of thin film metallizations on single crystal quartz // *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control*. 1997. Vol. 44, N 2, P. 237–249.

12. Grigoriev I. and Meilikhov E. *Physical Quantities: Reference book*. Moscow: Energoatomizdat, 1991.