



Free Electron Lasers for  
Infrared eXperiments

**Prof. dr. Andrei Kirilyuk**  
*chair Condensed Matter Physics*

FELIX Laboratory  
Toernooiveld 7  
6525 ED Nijmegen

Postbus 9010  
NL-6500 GL Nijmegen

Tel. +31-24-3653946

<https://www.ru.nl/felix/>

Ons kenmerk

Uw kenmerk

Doorkiesnummer

Datum

+31-24-3653946

February 11, 2022

Betreft

E-mail

Thesis referee report

[andrei.kirilyuk@ru.nl](mailto:andrei.kirilyuk@ru.nl)

Отзыв официального оппонента Кирилюка Андрея Ивановича  
на диссертационную работу Могунова Ярослава Александровича

«Пикосекундные импульсы деформации в наноструктурах диоксида ванадия со сверхбыстрым фазовым переходом»

представленную на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 1.3.8 – Физика конденсированного состояния

Диссертационная работа Могунова Ярослава Александровича посвящена экспериментальной сверхбыстрой (пикосекундной) акустике в новом для этой области объекте наноструктурах диоксида ванадия – материала, в котором при помощи фемтосекундных лазерных импульсов можно возбудить сверхбыстрый фазовый переход. Пикосекундная акустика является современной областью физики конденсированного состояния, в которой фемтосекундные лазерные импульсы приводят к генерации импульсов деформации длительностью единицы-десятки пикосекунд. Таким образом представленная диссертационная работа объединяет сверхбыстрое акустическое воздействие и сверхбыстрые явления с трансформацией кристаллической решётки.

Актуальность темы диссертационной работы продиктована высоким интересом к сверхбыстрым воздействиям разной природы, среди которых пикосекундные импульсы деформации занимают особенное место. Возможности акустического метода возбуждения на данный момент раскрыты не полностью, тем не менее пикосекундные импульсы деформации уже применяются для возбуждения прецессии намагниченности, в сверхбыстрой спиновой стрейнтронике и для модуляции транспортных свойств в гетероструктурах. Поэтому раскрытие новых явлений и возможностей пикосекундной акустики, возникающих при использовании материала со сверхбыстрым фазовым переходом как в качестве объекта воздействия, так и в качестве генератора импульсов деформации, является актуальной задачей. Сверхбыстрые фазовые переходы тоже представляют собой интересное и актуальное направление исследований в физике конденсированного состояния и сверхбыстрых процессов, и фазовый переход в  $\text{VO}_2$  выделяется среди них вследствие сосуществования изменения кристаллической решётки и трансформации диэлектрического состояния в металлическое. Изучение новых способов модулировать свойства  $\text{VO}_2$  также является актуальной задачей.

Структура диссертации:

Диссертация состоит из введения, шести глав, заключения, списка условных обозначений и списка литературы. Общий объём диссертации составляет 198 страниц, включая 50 рисунков и 2 таблицы.

Во введении обоснована актуальность темы исследований, сформулированы цель и задачи, а также выносимые на защиту Положения.

В первой главе приведён обзор литературы по пикосекундной акустике. Перечислены известные механизмы генерации пикосекундных импульсов деформации, приведены эффекты, влияющие на распространение таких импульсов через кристаллические подложки, описаны способы детектирования таких импульсов. В конце главы перечислены современные применения пикосекундных импульсов деформации.

Во второй главе приведён обзор литературы по диоксиду ванадия. Указаны схемы электронных уровней и параметры решётки для  $\text{VO}_2$  в диэлектрической и металлической фазе, приведены параметры фазового перехода и способы его возбуждения. Описана специфика фазового перехода в наноструктурах  $\text{VO}_2$  и дана подробная характеристика сверхбыстрого лазерно-индуцированного фазового перехода.

В третьей главе перечислены и подробно охарактеризованы все используемые в работе образцы и приведены подробные оптические схемы всех использованных в работе экспериментальных установок. Для образцов показаны данные о структуре, морфологии и параметрах фазового перехода. Описания схем экспериментов разделены на две группы: ключевых экспериментов и вспомогательных. Результаты вспомогательных экспериментов также приведены в этой главе.

Четвёртая глава посвящена определению фотоупругих свойств  $\text{VO}_2$  в диэлектрической и металлической фазе по фотоупругим откликам на пикосекундный импульс деформации. В работе использовано два образца на сапфировой подложке: гранулированная плёнка толщиной 145 нм и слой нано-островков со средней высотой 70 нм. Приведена рассчитанная временная форма используемого импульса деформации. В работе использована новая методика определения эффективного фотоупругого параметра, в основе которой лежит анализ временной формы детектируемого отклика. Экспериментально полученные отклики приведены для исследованных образцов в двух фазах. Далее обсуждены детали необходимого анализа и проведённого компьютерного моделирования откликов. Для гранулированной плёнки  $\text{VO}_2$  временная форма отклика, полученного при моделировании, сравнивалась с экспериментом только для первых 30 пс. Далее приведён анализ, показывающий влияние шероховатости поверхности на результат моделирования, объясняющий использование именно такого временного интервала. Определённые в результате моделирования области значений эффективного фотоупругого параметра приведены для обоих образцов в обеих фазах  $\text{VO}_2$ . Обнаружено, что значение этого параметра изменяется при фазовом переходе и при смене образца. Показано, что для образца с невысокими нано-островками временная форма детектируемого отклика одинакова для двух фаз материала, вследствие чего для определения эффективного фотоупругого параметра использовался только знак отклика.

В пятой главе экспериментально осуществлена генерация пикосекундных импульсов деформации в  $\text{VO}_2$  при помощи фемтосекундных лазерных импульсов. Использовались две эпитаксиальные плёнки  $\text{VO}_2$  высокого качества с толщинами 100 нм и 35 нм. В начале главы описана методика определения амплитуды деформации, генерируемой в  $\text{VO}_2$ , по удлинению пикосекундных импульсов деформации после прохождения через акустически нелинейную среду – сапфировую подложку. Такой метод был применён, поскольку длительность импульсов деформации может быть определена в проведённых экспериментах накачки-зондирования с высокой точностью. Далее приведены детали моделирования процесса распространения импульсов деформации различной начальной амплитуды через подложку и построена кривая, связывающая удлинение прошедшего через подложку импульса деформации с его начальной амплитудой, называемая автором «калибровочной». Также приведён анализ погрешностей для данной кривой. Затем приводятся экспериментально полученные отклики на прошедшие через подложку импульсы деформации для набора плотностей потоков энергии лазерных импульсов. Данные приведены для обоих образцов и для двух начальных фаз  $\text{VO}_2$ . Результат для  $\text{VO}_2$  в металлической фазе использовался в работе как опорное значение, для которого не происходит возбуждения сверхбыстрого фазового перехода. Плотности потока энергии лазерных импульсов были затем переведены в объёмные плотности энергии, поглощённой в  $\text{VO}_2$ . Далее, при помощи калибровочных кривых было построено соответствие амплитуды деформации, генерируемой в  $\text{VO}_2$ , и плотности энергии, поглощённой при этом в  $\text{VO}_2$ . Соответствующие зависимости приведены автором для двух образцов и двух начальных фаз  $\text{VO}_2$ . После этого представлен расчёт известных из литературы вкладов в генерацию пикосекундных импульсов деформации, ожидаемых для  $\text{VO}_2$ , а именно термоупругого и деформационного потенциала. При этом учитывалась трансформация  $\text{VO}_2$  в металлическую фазу, если плотность поглощённой энергии превышала пороговое значение. Расчёт был приведён только для плёнки  $\text{VO}_2$  толщиной 100 нм. Было показано, что данные для изначально металлического  $\text{VO}_2$  описываются двумя известными из литературы вкладами, а корректное описание данных для изначально диэлектрического  $\text{VO}_2$  возможно только при добавлении в модель вклада сверхбыстрого фазового перехода, численно равного  $+4.5e-3$ . Затем приведён результат

расчёта нагрева плёнки  $\text{VO}_2$  в двух начальных фазах, то есть при наличии вклада сверхбыстрого фазового перехода в генерацию деформации и при его отсутствии. При этом автором предполагался полностью нетермический характер вклада сверхбыстрого фазового перехода, на основании того, что при переходе первого рода материал требует определённой энергии для трансформации, которая не выделяется в виде тепла. В завершении главы приведено обсуждение результатов. Величина  $+4.5\text{e-}3$  сравнивается с известными из литературы данными о немонотонной трансформации решётки  $\text{VO}_2$  при сверхбыстром фазовом переходе. Слабое проявление вклада сверхбыстрого фазового перехода в генерацию деформации в плёнке толщиной 35 нм объяснено влиянием внутренних напряжений.

В шестой главе экспериментально продемонстрировано возбуждение сверхбыстрого фазового перехода в присутствии пикосекундного импульса деформации в нано-островках  $\text{VO}_2$ . Для этого нано-островки  $\text{VO}_2$  возбуждались и фемтосекундным лазерным импульсом, и пикосекундным импульсом деформации с контролируемой временной задержкой между ними. В начале главы приведены результаты компьютерного моделирования импульса деформации, инжектированного в нано-островки, и пространственно-временного распределения деформации внутри нано-островков. В отличие от аналогичного моделирования, проведённого в главе 4, здесь автором введена эффективная скорость звука для учёта наличия свободных границ у нано-островков. Затем приведены полученные в эксперименте фотоупругие отклики для различных временных задержек между импульсом деформации и лазерным импульсом, возбуждающим фазовый переход, и различных значений плотности потока энергии данного лазерного импульса. Продемонстрировано увеличение или уменьшение детектируемого сигнала в зависимости от знака деформации, присутствовавшей в нано-островках  $\text{VO}_2$  при возбуждении сверхбыстрого фазового перехода. Приведена процедура выделения данного нового вклада из измеренных сигналов, объясняющая происхождение всех вкладов в изменение отражения. Затем приведён анализ влияния динамической деформации на сверхбыстрый фазовый переход. Показано, что величина и знак дополнительного вклада полностью определяются величиной и знаком мгновенного значения деформации в момент возбуждения сверхбыстрого фазового перехода, благодаря чему наблюдаемый эффект сохраняется в отклике после выхода импульса деформации из нано-островков. Представлена временная зависимость дополнительного вклада, сделан вывод о его релаксации с наносекундной постоянной времени. Далее приведена зависимость амплитуды дополнительного вклада от плотности потока энергии лазерного возбуждения, показано, что вклад отсутствует, если сверхбыстрый фазовый переход не возбуждается ни в одном нано-островке, или возбуждается одновременно во всех. Представлено объяснение наблюдаемого эффекта, состоящее в следующем: присутствие деформации сжатия или растяжения в момент возбуждения сверхбыстрого фазового перехода увеличивает или уменьшает значения порогов для всех нано-островков, вследствие чего количество нано-островков, переведённых в металлическую фазу, уменьшается либо увеличивается. В конце главы приведена феноменологическая модель, объясняющая наблюдаемое влияние импульса деформации на сверхбыстрый фазовый переход, в том числе зависимость амплитуды и знака эффекта только от значения деформации в момент возбуждения фазового перехода.

В заключении перечислены основные выводы диссертационной работы и приведён список публикаций автора по теме диссертации.

Результаты, полученные в диссертационной работе Могунова Ярослава Александровича, являются новыми и состоят в следующем:

1) Впервые определены фотоупругие свойства тонкой плёнки  $\text{VO}_2$  в диэлектрической и металлической фазе. Для этого применена новая методика, позволяющая определять эффективный фотоупругий параметр  $P$  во время проведения эксперимента по пикосекундной акустике и эффективная для длин волн зондирующих лазерных импульсов вдали от особенностей электронной зоны материала. Наиболее точно значения  $P$  были определены для гранулированной плёнки толщиной 145 нм. Также было впервые показано, что значение  $P$  меняется при фазовом переходе и зависит от морфологии образца.

2) Впервые осуществлена генерация пикосекундных импульсов деформации в материале со сверхбыстрым фазовым переходом первого рода (диоксиде ванадия). Показано, что трансформация кристаллической решётки вносит существенный вклад в генерируемую амплитуду, превышающий другие известные вклады и численно равный  $+4.5\text{e-}3$ . Сделан вывод о том, что данный вклад не сопровождается рассеянием тепла и продемонстрировано уменьшение нагрева  $\text{VO}_2$  в три раза при наличии данного вклада по сравнению с генерацией в металлическом  $\text{VO}_2$ , для которого данный вклад отсутствует. Также показано, что амплитуда деформации, генерируемой в  $\text{VO}_2$ , достигает  $1.6\text{e-}2$  – значение, близкое к рекордным амплитудам пикосекундной деформации  $4\text{e-}2$ .

3) Впервые показано влияние пикосекундных импульсов деформации на сверхбыстрый фазовый переход в  $\text{VO}_2$ . Показано, что в зависимости от знака деформации, присутствующей в момент возбуждения перехода, меняется число эпитаксиальных наностроек  $\text{VO}_2$ , переводимых в металлическую фазу лазерным импульсом. Благодаря короткой длительности пикосекундного импульса деформации, данный эффект не компенсирует сам себя при прохождении импульса деформации через наностройки. Величина эффекта была оценена авторами в 1 % для деформации амплитудой  $1\text{e-}3$ .

Полученные результаты являются научно и практически значимыми. Сведения о фотоупругих свойствах наноразмерного  $\text{VO}_2$  необходимо учитывать при разработке оптических устройств, основанных на фазовом переходе в этом материале. Метод определения фотоупругих параметров при помощи пикосекундных импульсов деформации удобен для наноструктур, функционал которых основан на пикосекундной акустике. Высокая амплитуда импульсов деформации, генерируемых в  $\text{VO}_2$ , делает тонкие плёнки из этого материала эффективным опто-акустическим преобразователем. Выявленный нетермический вклад сверхбыстрого фазового перехода 1го рода в амплитуду генерируемой деформации и ассоциированное с ним уменьшение нагрева материала позволит использовать пикосекундные импульсы деформации для акустического возбуждения сложных объектов, таких как квазидвумерные слои и биологические образцы, не повреждая их. Также возникает перспективная возможность «включать» и «выключать» вклад сверхбыстрого фазового перехода, нагревая  $\text{VO}_2$  выше температуры металлизации. Определённая величина данного вклада дополняет имеющуюся информацию о динамике кристаллической решётки при сверхбыстром фазовом переходе в этом материале. Продемонстрированное в работе воздействие динамической деформации на количество наноструктур из  $\text{VO}_2$ , переводимых в металлическое состояние лазерным импульсом с заданной плотностью потока энергии, позволит управлять оптическими и электрическими свойствами наноструктур на основе  $\text{VO}_2$  при помощи деформации. Наличие деформации разного знака в пикосекундном импульсе деформации позволяет изменять знак и амплитуду такого воздействия, не внося никаких изменений в конструкцию образца и не меняя внешнее воздействие на образец. Высокую значимость имеет сделанный вывод о критическом значении длительности импульса деформации на наличие эффекта, что открывает новые горизонты перед практическим применением пикосекундной акустики.

На основе результатов диссертационной работы сделано 4 публикации, в том числе в Nature Communications и Physical Review Applied. Все публикации автора по теме диссертации проиндексированы в базах данных WoS и Scopus.

Достоверность полученных Могуновым Ярославом Александровичем результатов не вызывает сомнений, поскольку в работе применялись зарекомендовавшие себя экспериментальные методы фемтосекундной накачки-зондирования, атомно-силовой микроскопии, эллипсометрии. Получены надёжные экспериментальные данные. Сделанные в диссертационной работе выводы и полученные результаты непротиворечивы, согласуются с установленными научными фактами о  $\text{VO}_2$  и пикосекундных импульсах деформации. Результаты работы опубликованы в известных рецензируемых журналах.

Автореферат полностью отражает основные результаты и выводы работы, верно отражает содержание диссертации.

Тем не менее, после знакомства с текстом диссертации возникли некоторые замечания и пожелания:

1) В частности, используемые в данной работе пленки оксида ванадия довольно сильно отличаются от монокристаллов их структурой и морфологией. Полученные данные не дают возможности напрямую экстраполировать поведение динамики фазового перехода в данных образцах на динамику в идеальных монокристаллах.

2) В будущем, продолжая тему предыдущего замечания, было бы интересно провести исследования фазового перехода в монокристаллических пленках  $\text{VO}_2$  с пространственным разрешением, таким образом проследив за кинетикой этого процесса.

3) Во введении к диссертации упоминается верхний предел частот акустических фононов лежащий в терагерцовом диапазоне, как перспектива использования механизмов стрейнтроники для элементов сверхбыстрой электроники. К сожалению, дальнейшее обсуждение этого диапазона отсутствует, с точки зрения возможных экспериментальных подходов для изучения явлений в этом диапазоне.

Приведённые замечания не уменьшают общую положительную оценку работы, и во всяком случае не умаляют сделанных в диссертационной работе выводов.

Заключение:

Считаю, что диссертационная работа Могунова Ярослава Александровича «Пикосекундные импульсы деформации в наноструктурах диоксида ванадия со сверхбыстрым фазовым переходом» отвечает всем требованиям, предъявляемым к диссертациям на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 1.3.8 «Физика конденсированного состояния» согласно Положению о присуждении ученых степеней в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Физико-техническом институте им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук, а ее автор Могунов Ярослав Александрович заслуживает присуждения ему ученой степени кандидата физико-математических наук.

11 февраля 2022

Официальный оппонент:

PhD (приравниваемая в РФ к степени к. ф.-м. н.), проф.



Кириллюк Андрей Иванович

Руководитель направления физики конденсированного состояния, Лаборатория FELIX,  
Университет им. св. Радбода Утрехтского (Radboud University),

Нидерланды, Неймеген (Toernooiveld 7, 6525 ED Nijmegen, The Netherlands)

Тел.: +31-24-3653946

E-mail: andrei.kirilyuk@ru.nl