

Нелинейный отклик сверхтонких пленок Ni в методе вырожденной четырехфотонной спектроскопии

Л.П.Кузнецова, В.М.Петникова, К.В.Руденко, В.В.Шувалов

Экспериментально исследованы сверхтонкие (толщина 17–25 нм) сплошные пленки Ni на подложках из стекла K8 и ZrO₂. Методом вырожденной четырехфотонной спектроскопии обнаружены характерные резонансы на зависимости эффективности самодифракции от длины волны компонент накачки. В рамках модели электронной кубической нелинейной восприимчивости, учитывающей реальную структуру спектра электронных состояний Ni, ее квантово-размерную перенормировку и спиновое расщепление, межзонную и внутризонную релаксацию, насыщение и правила отбора для электронных переходов, показано, что в спектральном диапазоне 620–634 нм определяющий вклад в нелинейный отклик пленок Ni на пикосекундное (длительность импульса 20 пс) лазерное воздействие вносит электронная подсистема. Определено время релаксации межзонной поляризации T₂, которое оказалось равным ~200 фс.

Ключевые слова: нелинейный отклик, сверхтонкие пленки Ni, вырожденная четырехфотонная спектроскопия.

Введение

В последние годы резко усилился интерес к изучению физических свойств сверхтонких металлических пленок [1–3]. В первую очередь это связано с потребностями быстро развивающейся микро- и нанoeлектроники, однако такие исследования представляют и значительный научный интерес. Дело в том, что благодаря высокой концентрации свободных носителей в металлах (10^{21} – 10^{23} см⁻³) в последних должно преобладать рассеяние электрон-электронного типа с характерными временами, лежащими в субпикосекундном диапазоне [1, 2]. Кроме того, в сверхтонких пленках могут наблюдаться проявления так называемого квантово-размерного эффекта (КРЭ) [3, 4], которые отсутствуют в массивных образцах. Знание реальных спектров электронных состояний и кинетики релаксационных процессов необходимо для понимания многих фундаментальных и технологических свойств металлов. В последнее время появился целый ряд работ, посвященных изучению кинетики сверхбыстрых процессов в сверхтонких металлических (в том числе ферромагнитных) пленках оптическими методами. Проводилось зондирование пропускания и/или отражения образца, предварительно возбужденного фемтосекундным лазерным импульсом [2], использовалась фотоэмиссионная спектроскопия [1] и ряд других методов.

В работе [5] экспериментально исследованы сверхтонкие (толщина $L = 17 - 25$ нм) пленки Ni методом пикосекундной бигармонической накачки (БН). Обнаруженные характерные боковые резонансы на крыле зависимости эффективности самодифракции η от частотной расстройки Δ компонент БН интерпретированы в рамках описанной там же модели электронной кубической нелинейной восприимчивости. Модель учитывает реальную структуру спектра электронных состояний Ni, его кван-

товоразмерную перенормировку и спиновое расщепление, меж- и внутризонную релаксацию, правила отбора для электронных переходов, насыщение последних и т. д. При временах релаксации межзонной поляризации $T_2 > 200$ фс получено качественное соответствие расчетных зависимостей и данных эксперимента. Показано, что в вырожденном по частоте случае – так называемый метод вырожденной четырехфотонной спектроскопии (ВЧФС) – на шкале частот должны существовать точки, в окрестности которых электронная часть нелинейного отклика пленок Ni должна резко уменьшаться.

Целью настоящей работы являлась экспериментальная проверка последнего утверждения, т. е. экспериментальное исследование зависимости эффективности нелинейного отклика сверхтонких пленок Ni от длины волны компонент накачки λ в методе ВЧФС и интерпретация полученных в ходе этих экспериментов данных на основе модели [5]. Ставилась задача путем варьирования свободных параметров модели добиться качественного соответствия расчетных и экспериментальных зависимостей $\eta(\lambda)$ и, тем самым, выделить необходимую спектроскопическую информацию.

1. Метод ВЧФС

В нелинейной спектроскопии конденсированных сред хорошо известны методы, основанные на двухфотонном возбуждении и зондировании электронных переходов [6], которые получили общее название методов четырехфотонной спектроскопии. Наиболее существенным является их подразделение на динамические (нестационарные) и стационарные. В методах стационарной спектроскопии используются световые импульсы, длительность которых существенно превышает временной масштаб изучаемых процессов. При этом два распространяющихся под углом друг к другу пикосекундных лазерных импульсов с частотами $\omega_{1,2}$ и волновыми векторами $k_{1,2}$ интерферируют в исследуемой среде и возбуждают в ней «пакет» электронных возбуждений на разностной частоте $\Delta = \omega_1 - \omega_2$. Возбужденный электрон взаимодействует с термо-

статом и передает ему «дефект» электронного импульса $\delta\mathbf{K} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$. Роль термостата могут играть акустические и оптические фононы, другие электроны и дырки, поверхностные возбуждения, так называемые спиновые волны и т. д.

Одновременно с возбуждением проводится зондирование среды пробным пучком, который может иметь ту же частоту $\omega_3 = \omega_1$ и тот же волновой вектор $\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1$, что и одна из компонент накачки. Пробный пучок дифрагирует на низкочастотных возбуждениях среды (самодифракция), что и приводит к генерации волны поляризации и светового поля на комбинационной частоте $\omega_4 = \omega_3 + \omega_1 - \omega_2$ с волновым вектором $\mathbf{k}_4 = \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$. В описанных ниже экспериментах был реализован метод ВЧФС [7], в котором частота регистрируемого сигнала совпадает с частотами волн накачки ($\omega_4 = \omega_{1,2,3}$), но имеет другое направление распространения: $\mathbf{k}_4 = 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$; $\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_3 \neq \mathbf{k}_2$. В эксперименте измеряется зависимость эффективности η описанного выше нелинейного процесса от частоты $\omega_4 = \omega_{1,2,3}$ (длина волны $\lambda_4 = \lambda_{1,2,3}$) компонент накачки. Метод ВЧФС позволяет идентифицировать и количественно определить спектральные положения, ширины и соотношения амплитуд вкладов различных физических процессов в нелинейный отклик [7].

Отметим, что каждая экспериментальная точка на зависимости $\eta(\lambda)$ в методе ВЧФС является одновременно начальной ($\Delta = 0$) точкой для соответствующей экспериментальной зависимости $\eta(\Delta)$ в методе БН. Как будет ясно из дальнейшего, это обстоятельство является весьма важным при совместном анализе экспериментальных данных, полученных двумя перечисленными выше методами стационарной четырехфотонной спектроскопии.

2. Эксперимент

Эксперимент проводился на установке, описанной в [5]. Импульсы генерации двух независимо перестраиваемых пикосекундных лазеров на растворе красителя (ЛРК) (длительность 20 пс, пиковая мощность до 50 кВт, ширина спектра генерации 1.5 см^{-1}) совмещались во времени, фокусировались и под углом 7° направлялись в образец. Настройка комплекса на точку совмещения импульсов ЛРК по частоте, во времени и в пространстве проводилась по корреляционной методике, т. е. по максимуму эффективности неколлинеарной ГВГ в кристалле KDP ($L = 1 \text{ мм}$) и эффективности самодифракции как в тонких ($L = 10 - 20 \text{ мкм}$) монокристаллических полупроводниковых пленках GaSe, так и непосредственно в исследуемых пленках Ni.

В каждой экспериментальной точке проводилась серия измерений, в которой при фиксированной длине волны генерации одного из ЛРК ($\lambda = \lambda_1$) варьировалась длина волны генерации другого ЛРК (λ_2), за счет чего система настраивалась на максимум эффективности нелинейного процесса ($\lambda_2 = \lambda_1$). Длины волн компонент накачки $\lambda_{1,2}$ менялись в диапазоне 620–634 нм, их поляризации были параллельны друг другу и поверхности исследуемой пленки, начальная температура образцов составляла 300 К. Чувствительность в канале регистрации сигнала самодифракции достигала 10^{-16} Дж/имп.

Сигналы с фотоприемников обрабатывались ЭВМ, которая проводила первичную статистическую обработку получаемых данных и исключала реализации, не попавшие в диапазон программно разрешенных «ворот» по

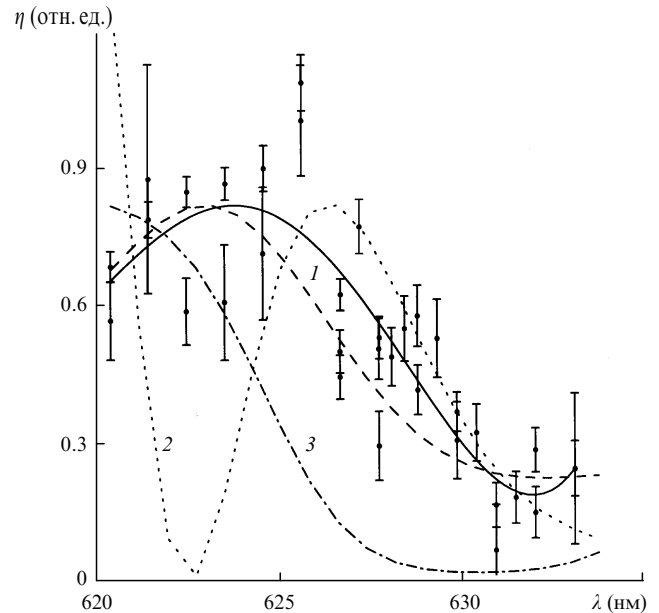


Рис.1. Экспериментальные зависимости нелинейного отклика η никелевой пленки от длины волны накачки λ (точки) и их аппроксимация (сплошная линия) для пленки толщиной $L = 17$ нм, а также результаты расчета для ферромагнитной (с учетом (1) и без учета (2) правил отбора по спину) и парамагнитной (3) фаз при $L = 5$ нм, электронной температуре $\Theta_e = 600$ К, степени максимального насыщения электронных переходов $s = 0.01$, $T_2 = 200$ фс.

параметрам 4 контролируемых сигналов, что значительно (до 10 %) уменьшало стандартное отклонение полезного сигнала.

В качестве экспериментальных образцов использовались сплошные сверхтонкие ($L = 17 - 25$ нм) пленки Ni, изготовленные методом лазерного напыления на подложках из стекла K8 и ZrO_2 . Механическая и химическая полировка последних позволила достичь размера шероховатостей рабочих граней не более 5 нм. Перед напылением проводился отбор полированных подложек по минимуму рассеяния. Толщина пленок контролировалась как непосредственно в процессе напыления (по числу лазерных импульсов), так и после их изготовления (методом рентгеновской рефлексометрии).

На рис.1 показаны результаты измерений зависимости эффективности самодифракции η от длины волны накачки λ для пленки Ni толщиной $L = 17$ нм. Сплошная линия получена полиномиальной аппроксимацией данных эксперимента по методу наименьших квадратов (среднеквадратичное отклонение на точку соответствует погрешности эксперимента). Хорошо видны две характерные спектральные особенности: эффективность процесса имеет «подъем» в окрестности точки $\lambda \sim 624$ нм и «провал» при $\lambda \sim 632$ нм.

Следует отметить, что результаты трех серий измерений (менялось место фокусировки пучков в образце) согласуются друг с другом. Из этого можно сделать вывод, что либо использованные нами образцы практически однородны, либо масштаб имеющихся неоднородностей много меньше размера фокусировки пучков ЛРК (100–150 мкм). Отметим, что наличие «провала» в электронной части нелинейного отклика Ni в окрестности $\lambda \sim 632$ нм было предсказано в [5] и совпадает с данными сходных по идеологии экспериментов по нелинейной спектроскопии пленок YBaCuO , Cu и C_{60} , проведенных авторами [8–10].

3. Результаты численного расчета

Для интерпретации результатов эксперимента нами использовалась модель, описанная в [5]. Напомним, что в этой модели присутствует определенная свобода в выборе ряда подгоночных параметров, таких как время релаксации межзонной поляризации T_2 , температура электронной подсистемы Θ_e , степень максимального насыщения (относительного изменения чисел заполнения) электронных переходов s и др. Собственно говоря, численное моделирование с варьированием именно этих параметров при использовании критерия соответствия расчетных зависимостей данным эксперимента и являлось основной процедуры извлечения необходимой нам спектроскопической информации.

На практике это выглядело следующим образом. В результате численного моделирования нами были получены серии расчетных зависимостей нелинейного отклика сверхтонких пленок Ni $\eta(\Delta)$ при разных значениях свободных параметров (см. выше), включая наличие либо снятие правил отбора для переходов между различными подзонами. Значения свободных параметров считались допустимыми лишь в том случае, когда на расчетных зависимостях $\eta(\Delta)$ в методе БН появлялись описанные в [5] резонансные особенности («провалы») в диапазоне частотных расстройек $\sim 150-200 \text{ см}^{-1}$, а на расчетных зависимостях $\eta(\lambda)$ в методе ВЧФС спектральные положения особенностей (областей, соответствующих максимальной и минимальной эффективности самодифракции) и динамический диапазон изменения $\eta(\lambda)$ (соотношение между максимальным и минимальным η в исследованной области спектра) также согласовывались с данными эксперимента.

Ряд физических причин, следствием которых могли являться перечисленные выше особенности, уже был нами рассмотрен в [5] и отвергнут. В связи с этим на данном этапе исследований в качестве возможных причин появления особенностей на зависимостях $\eta(\lambda)$ анализировались следующие явления:

1. Интерференция нелинейных откликов электронной и фононной подсистем образца (возбуждение акустических и тепловых решеток). При этом наиболее существенную с точки зрения наблюдаемых эффектов (особенностей нелинейного отклика) роль должны играть относительные веса вкладов разных подсистем и их характерные резонансные частоты.

2. Расщепление электронного спектра образца на зоны разрешенных и запрещенных состояний. При переходах между разрешенными электронными состояниями мог оказаться важен учет правил отбора по главному и орбитальному квантовым числам.

3. Расщепление зон разрешенных электронных состояний на спиновые подзоны за счет спин-спиновых и спин-орбитального взаимодействий. Существенное значение с точки зрения наблюдаемого характера зависимости $\eta(\lambda)$ могли играть правила отбора по спину и энергетическое расщепление спиновых подзон.

4. Дополнительное расщепление спектра разрешенных электронных состояний на двумерные квантоворазмерные подзоны за счет проявлений КРЭ. Наблюдаемые эффекты могли меняться с изменением толщины образца.

Зависимость $\eta(\lambda)$ в методе ВЧФС представляет собой набор экспериментальных точек, являющихся начальными ($\Delta = 0$) точками соответствующего семейства зависи-

моостей $\eta(\Delta)$ в методе БН. Таким образом, если центральный пик $\eta(\Delta)$ в методе БН обусловлен спектрально-независимыми возбуждениями акустических и/или тепловых решеток (см. [5]), то в методе ВЧФС должна быть получена гладкая монотонная зависимость $\eta(\lambda)$. Поскольку это не так и на рис.1 видны хорошо выраженные спектральные особенности, то появление последних, как и центрального пика на зависимости $\eta(\Delta)$ в методе БН, должно быть обусловлено электронной частью нелинейной восприимчивости.

При расщеплении электронного спектра на зоны и подзоны разрешенных состояний с учетом соответствующих правил отбора для переходов между ними (см. ниже) все интегралы и суммы, входящие в выражение для полного электронного нелинейного отклика [5], распадаются на несколько «когерентных» (сфазированных) составляющих. Общее число последних (полное число слагаемых в выражении для электронного отклика) определяется перебором всех возможных комбинаций различных начальных и промежуточных электронных состояний. Дальнейшая интерференция этих составляющих и может приводить к появлению неких спектральных особенностей на зависимостях $\eta(\Delta)$ и $\eta(\lambda)$ в методах БН и ВЧФС соответственно.

В проведенных нами численных расчетах зонная структура Ni считалась заданной (см. [5]). Положение уровня Ферми для каждой конкретной реализации корректировалось таким образом, чтобы сохранить заданное число $4s$ - (0.54) и $3d$ - электронов (9.46) проводимости на ячейку, что соответствует известной [11] схеме заполнения электронных состояний в Ni. Для исследованных в наших экспериментах пленок толщиной $L = 17 - 25 \text{ нм}$ число квантоворазмерных подзон уже настолько велико, что проявления КРЭ фактически не сказываются на результатах расчета (см. [5]). По этой причине все приведенные ниже зависимости $\eta(\lambda)$ будут соответствовать $L = 5 \text{ нм}$ (расщепление каждой зоны на 10 квантоворазмерных подзон).

При плотности энергии импульса накачки $\sim 1 \text{ мДж/см}^2$ оценка изменения температуры исследованных образцов с учетом удельной теплоемкости Ni в пренебрежении отводом тепла в подложку дает $\Delta\Theta \sim 3 \text{ К}$. Однако из-за малой теплоемкости электронной подсистемы и конечной скорости теплообмена последней с фононной подсистемой электронная температура Θ_e может значительно «отрываться» от температуры решетки и достигать 1000 К и более [12]. Оказалось, что вариации Θ_e в диапазоне 300–1000 К практически не сказываются на характере расчетных зависимостей $\eta(\lambda)$. Так же слабо влияет на ход полученных кривых $\eta(\lambda)$ и параметр s состояний, задействованных в электронных переходах [5]. Таким образом, все приведенные ниже расчетные данные (рис.2, 3) будут соответствовать $\Theta_e = 600 \text{ К}$ и $s = 0.01$.

Итак, роль «свободных» (подгоночных) параметров в наших расчетах играли всего три фактора. Поскольку расщепление спиновых подзон определено лишь в состоянии термодинамического равновесия, а Θ_e может существенно превышать температуру не только решетки, но и точку Кюри для Ni ($\Theta_C = 631 \text{ К}$ [13]), нами были рассмотрены две крайние ситуации: случай «ферромагнитной фазы», когда спиновое расщепление точно соответствует данным работы [14], и случай «парамагнитной фазы», когда такое расщепление отсутствует. В парамагнитной фазе энергия любого разрешенного электронного состояния определялась нами как полусумма заданных

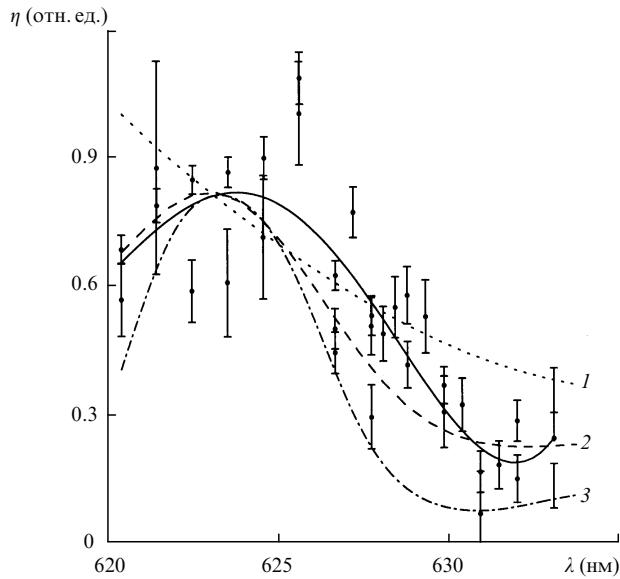


Рис.2. Экспериментальные зависимости $\eta(\lambda)$ для Ni (точки и сплошная линия) при $L = 17$ нм и результаты расчета для ферромагнитной фазы с учетом правил отбора по спину при $T_2 = 100$ (1), 200 (2) и 300 фс (3), $L = 5$ нм, $\Theta_e = 600$ К, $s = 0.01$.

энергий электронных состояний с противоположной ориентацией спина. Для электронных переходов из связанных в свободные состояния (и наоборот) правила отбора по орбитальному квантовому числу, справедливые для изолированного атома, могут нарушаться. Существенную роль могут играть смешанные состояния. В связи с этим были рассмотрены также две аналогичные предельные ситуации: случай полного снятия всех запретов по орбитальному квантовому числу и спину для электронных переходов и случай, когда эти правила отбора были теми же, что и для изолированного атома. Во всех численных реализациях время релаксации межзонной поляризации T_2 варьировалось в диапазоне 100–300 фс.

Результат численного расчета электронной части нелинейного отклика пленки Ni в парамагнитной и ферромагнитной фазах в методе ВЧФС при $T_2 = 200$ фс иллюстрируют кривые 1–3 на рис.1. Хотя все приведенные здесь нормированные на максимальное η расчетные зависимости $\eta(\lambda)$ и имеют некие спектральные особенности, лишь в случае ферромагнитной фазы с учетом правил отбора по спину (кривая 1 на рис.1) они удовлетворительно описывают данные эксперимента (сплошная линия на рис.1). Более того, даже в этом случае вариации T_2 в диапазоне 100–300 фс приводят к кардинальным изменениям зависимости $\eta(\lambda)$ и соотношения между максимальным и минимальным η в исследованной нами спектральной области (рис.2). Так, при $T_2 = 100$ фс (кривая 1 на рис.2) практически все спектральные особенности электронной части нелинейного отклика Ni должны были бы вообще отсутствовать, а при $T_2 = 300$ фс (кривая 3 на рис.2) диапазон изменения η в области $\lambda = 620 - 634$ нм должен был бы превышать 10.

Таким образом, можно практически однозначно утверждать, что экспериментально наблюдаемый нами в методе ВЧФС характер зависимости $\eta(\lambda)$ вполне удовлетворительно соответствует расчетному отклику ферромагнитной фазы Ni с неснятыми правилами отбора по спину при $T_2 \sim 200$ фс. Хотя спектральное положение максимума эффективности нелинейного процесса при этом ($\lambda \sim 623$ нм, кривая 2 на рис.2) и отличается слегка

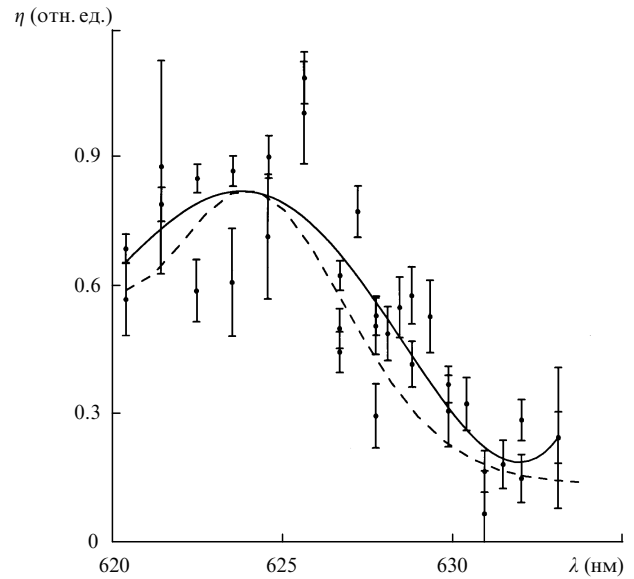


Рис.3. Экспериментальные зависимости $\eta(\lambda)$ для Ni (точки и сплошная линия) при $L = 17$ нм и результаты расчета для ферромагнитной фазы при частичном (1.5 %) снятии правил отбора по спину и $L = 5$ нм (штриховая кривая) для $\Theta_e = 600$ К, $s = 0.01$, $T_2 = 200$ фс.

от данных эксперимента ($\lambda \sim 624$ нм, сплошная линия на рис.2), даже это незначительное расхождение может быть легко устранено за счет когерентного «подмешивания» в полный нелинейный отклик Ni дополнительного вклада ферромагнитной фазы со снятыми правилами отбора по спину (кривая 2 на рис.1). Проведенный нами расчет показал (рис.3), что спектральные положения всех особенностей на экспериментальной (сплошная линия) и расчетной (пунктир) зависимостях $\eta(\lambda)$ в методе ВЧФС практически точно совпадают уже в том случае, когда относительный вклад ферромагнитной фазы со снятыми правилами отбора по спину составляет всего 1.5 %.

Заключение

Анализ полученных методом ВЧФС экспериментальных данных позволяет нам утверждать, что определяющий вклад в нелинейный отклик исследованных сверхтонких пленок Ni на пикосекундное лазерное воздействие вносит электронная подсистема. Судя по всему, причиной появления характерных спектральных особенностей («подъем» эффективности самодифракции η в окрестности точки $\lambda \sim 625$ нм и «провал» η при $\lambda \sim 632$ нм) на зависимости $\eta(\lambda)$ является то, что в зонной структуре Ni уровень Ферми пересекает одновременно 4s- и 3p-зоны.

Таким образом, сами эти особенности являются, скорее всего, результатом интерференции вкладов двух упомянутых зон в полный нелинейный отклик. Хотя электронная подсистема исследуемых пленок Ni и разогревается за счет поглощения пикосекундных лазерных импульсов до температур порядка 800 К (температура подсистемы «отрывается» от температуры решетки и заведомо превышает температуру Кюри), спиновое расщепление электронного спектра, судя по всему, сохраняется, а правила отбора по спиновому и орбитальному квантовым числам продолжают работать. Это согласуется с данными [12], где было показано, что при нагреве пленок Ni пикосекундными лазерными импульсами до температур, практически вдвое превышающих температуру Кюри, эти пленки не размагничиваются.

Сравнение результатов численного моделирования зависимости $\eta(\lambda)$ (метод БН) с данными эксперимента позволило нам получить лишь нижнюю оценку времени релаксации межзонной поляризации: $T_2 > 200$ фс (см. [5]). Метод ВЧФС оказался значительно «чувствительнее» к изменению этого, по сути дела, единственного для него свободного параметра. Здесь вариации T_2 даже в сравнительно узких пределах (100–300 фс) хотя и не меняют положения спектральных особенностей на расчетных зависимостях $\eta(\lambda)$, приводят к кардинальным изменениям динамического диапазона η в исследованной нами спектральной области (см. рис.2). За счет этого в ходе интерпретации экспериментальных данных, полученных методом ВЧФС, нам удалось установить, что в исследованных нами сверхтонких пленках Ni время $T_2 \sim 200$ фс. Полученная оценка соответствует характерным временам релаксации для полупроводников [15], хотя, учитывая высокую концентрацию свободных носителей в металлах, можно было бы ожидать, что времена релаксации в Ni окажутся на порядок меньше. Эта оценка согласуется с результатами и других исследований ряда металлов в работах [1,2,9,12], где приводится, например, время электронной релаксации в золоте, равное ~ 500 фс [2].

Все приведенные выше конкретные выводы, по крайней мере, не противоречат экспериментальным данным, полученных нами методом БН [5]. Однако легко убедиться, что анализ экспериментальных данных, полученных методом ВЧФС, позволил нам сделать гораздо более конкретные выводы, чем в [5]. Таким образом, этот достаточно хорошо известный метод когерентной четырехфотонной спектроскопии оказался в исследованиях сверхтонких пленок Ni значительно более информативным.

Настоящая работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты № 98-02-17231 и 96-15-96460), ГНТП «Фундаментальная метрология» (проект 2.68) и «Физика квантовых и волновых явлений», направление

«Фундаментальная спектроскопия» (проект 08.02.67).

1. Fann W.S. et al. *Phys.Rev.B*, **46**, 13592 (1992).
2. Sun C.-K. et al. *Phys.Rev.B*, **50**, 15337 (1994).
3. Kuzik L.A. et al. *Surface Science*, **361–362**, 882 (1996).
4. Тавгер Б.А., Демиховский В.Я. *УФН*, **96**, 61 (1968).
5. Петникова В.М., Руденко К.В., Шувалов В.В. *Квантовая электроника*, **28**, 69 (1999).
6. Ахманов С.А., Коротеев Н.И. *Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света: активная спектроскопия комбинационного рассеяния света* (М., Наука, 1981).
7. Kharchenko M.A., Petnikova V.M., Shuvalov V.V. *Phys.Letts A*, **125**, 347 (1987).
8. Chekalin S.V. et al. *Phys.Rev.Letts*, **67**, 3860 (1991).
9. Головлев В.В. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **55**, 441 (1992).
10. Farztdinov V.M. et al. *Phys.Rev.B*, **56**, 4176 (1997).
11. Kittel C. *Introduction to solid state physics* (N.Y., Wiley, 1986).
12. Агранат М.Б. и др. *ЖЭТФ*, **86**, 1376 (1984).
13. *Таблицы физических величин. Справочник*. Под ред. И.К.Кикоина (М., Атомиздат, 1976).
14. Marschall E., Bross H. *Phys.Status Solidi (b)*, **90**, 241 (1978).
15. Kornienko A.G. et al. *J.Appl.Phys.*, **80**, 2396 (1996).

L.P.Kuznetsova, V.M.Petnikova, K.V.Rudenko, V.V.Shuvalov. Nonlinear response of ultrathin Ni films in degenerate four-photon spectroscopy.

Continuous ultrathin Ni films (the thickness is 17–25 nm) on K8 and ZrO₂ substrates have been experimentally investigated. By the degenerate four-photon spectroscopy (DFPS), specific resonant features have been found in the self-diffraction efficiency as a function of the wavelength of the pumping components. The model of a electronic cubic nonlinear susceptibility, which takes into account a real spectrum of Ni electronic states, its quantum-size renormalization and spin splitting, a saturation and selection rules for the electronic transitions, processes of inter-band and intra-band relaxation, has been used to interpret the experimental data obtained. It has been shown that the films' nonlinear response to a picosecond (the pulse duration is 20 ps) laser excitation in the spectral range 620–634 nm is determined by Ni electronic subsystem. The decay time of inter-band polarization $T_2 \sim 200$ fs has been found.