

02

Кинетика обратимых фазовых переходов в тонких пленках $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ при фемтосекундном лазерном облучении

© А.В. Колчин^{1,*}, С.В. Заботнов², Д.В. Шулейко^{2,3}, П.И. Лазаренко⁴, В.Б. Глухенькая⁴,
С.А. Козюхин⁴, П.К. Кашкаров^{2,5}

¹ Институт общей и неорганической химии имени Н.С. Курнакова,
119991 Москва, Россия

² Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова, физический факультет,
119991 Москва, Россия

³ Центр компетенций НТИ по технологиям хранения и анализа больших данных, Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова,
11999 Москва, Россия

⁴ Национальный исследовательский университет „Московский институт электронной техники“,
Институт перспективных материалов и технологий,
124498 Зеленоград, Москва, Россия

⁵ Национальный исследовательский центр „Курчатовский институт“,
123182 Москва, Россия

e-mail: avkolchin@physics.msu.ru

Поступила в редакцию 01.12.2022 г.

В окончательной редакции 23.12.2022 г.

Принята к публикации 28.01.2023 г.

Облучение фемтосекундными лазерными импульсами тонких пленок халькогенидного стеклообразного полупроводника $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ позволяет осуществлять фазовые переходы из аморфного состояния в кристаллическое и обратно. В настоящей работе возможность инициации процессов аморфизации и кристаллизации в тонких пленках $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ набором импульсов лазерного излучения с длительностью 135 fs подтверждается экспериментально и теоретически. Согласно двухтемпературной модели и экспериментальным данным, оценены кинетики температур электронов и решетки во время фемтосекундного лазерного воздействия. Оценка проводилась с учетом динамического изменения диэлектрической проницаемости материала пленки, линейного оптического поглощения и коэффициента отражения, существенно влияющих на воздействие сверхкороткого лазерного импульса в течение его длительности. Определены температуры и скорости охлаждения, необходимые для достижения инициации фазовых переходов ИК лазерными импульсами с субпикосекундной длительностью. Полученные результаты открывают перспективы к дальнейшему повышению скорости работы создаваемых энергонезависимых активных устройств нанофотоники на основе $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ за счет применения импульсов с фемтосекундной длительностью для переключения фазового состояния.

Ключевые слова: фемтосекундные лазерные технологии, спектроскопия комбинационного рассеяния света, динамика фазовых переходов, $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$.

DOI: 10.21883/OS.2023.02.54996.10-23

Введение

Халькогенидный полупроводник $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ (GST225) активно используется в качестве базового материала для разработки устройств энергонезависимой и перезаписываемой памяти [1]. В частности, GST225 применяется в DVD–RW и PC–RAM благодаря возможности реализации в данном материале обратимых фазовых переходов между аморфной и кристаллической фазами, существенный контраст между оптическими и электрофизическими свойствами которых позволяет записывать, энергонезависимо хранить и считывать информацию. Одним из способов выполнения операций записи и перезаписи информации является воздействие лазерного излучения.

В случае непрерывного лазерного облучения кристаллизация изначально аморфных пленок GST225 протекает за время не менее 100 ns [2]. Такое время необходимо для роста кристаллических зародышей внутри аморфной матрицы [3]. При этом кристаллизация аморфного GST225 сопровождается перестроением атомов германия в решетке [4] и возможна при относительно низких температурах в диапазоне 400–500 K [5].

В настоящее время значительный интерес научного сообщества вызывает задача нахождения технологических подходов, позволяющих за минимально возможные времена кристаллизовать аморфный GST225 с целью повышения быстродействия носителей информации на основе данного материала. Это необходимо для успешной конкуренции с современными форматами DRAM-и флэш-памяти [6]. Переход от применения наносекунд-

ных лазерных импульсов к фемтосекундным для переключения фазового состояния GST225 представляется перспективным для обеспечения качественного скачка в дальнейшем развитии устройств на основе фазопеременных материалов [7]. Так, в работе [8] показано, что минимальное время выравнивания температур электронов и решетки в GST225 при нагреве ультракороткими лазерными импульсами, достаточное для перехода из аморфного состояния в кристаллическое, составляет 80 ps, что показывает высокий потенциал использования данного материала для быстрой записи информации таким путем. Важно при этом отметить, что для формирования кристаллической фазы скорость охлаждения GST225 не должна превышать 300 K/ns [9].

С другой стороны, операция стирания памяти в устройствах на основе GST225, реализуемая путем обратного фазового перехода — аморфизации [1] — происходит за счет нагрева закристаллизованных областей до температуры плавления 880 K и последующего охлаждения со скоростью более 10 K/ns [10]. Такие условия могут быть достигнуты подбором длительности и энергии фемтосекундных лазерных импульсов при условии подбора подходящих толщин пленок GST225 и типов подложек, также оказывающих влияние на кинетику фазовых переходов [11].

Несмотря на обилие экспериментальных и теоретических результатов, исследование обратимых фазовых переходов в тонких пленках GST225 и сравнение расчетных результатов с наблюдаемыми на практике делается преимущественно без точной привязки параметров численного и реального экспериментов друг к другу. Целью настоящей работы является экспериментальное определение возможности инициации фазовых переходов из аморфного состояния в кристаллическое и обратно в тонких пленках GST225 под действием фемтосекундных лазерных импульсов и анализ динамики таких процессов с помощью моделирования в рамках двухтемпературной модели при использовании в расчетах экспериментально определенных параметров образцов и различных режимов лазерного излучения.

Экспериментальные методы

Тонкие аморфные пленки GST225 на предварительно термически окисленных подложках кристаллического кремния были изготовлены методом магнетронного распыления (MVU TM Magna 10) поликристаллической мишени (ACI Alloys). Толщина слоя оксида кремния (SiO₂) составила 1000 ± 40 nm, а GST225 — 200 ± 20 nm. Давление аргона в камере до и во время распыления составляло 3 · 10⁻³ и 5.7 · 10⁻¹ Pa соответственно.

Фазовые переходы в осажденных пленках были индуцированы излучением, генерируемым фемтосекундной лазерной системой Avesta (длина волны λ = 1250 nm, длительность импульса τ = 135 fs, частота следования

ν = 10 Hz, энергия импульса E = 10 μJ). Облучение образцов проводилось в воздушной среде в режиме сканирования лазерным лучом поверхности пленки GST225 при нормальном падении и фокусировке линзой с фокусным расстоянием 8 см. Плотность энергии лазерного излучения при этих условиях составила F ≈ 0.1 J/cm².

Режим сканирования был реализован с помощью механических автоматизированных трансляторов Standa. Перемещение образца происходило в одном направлении вдоль ориентации вектора поляризации лазерного излучения со скоростью V = 5 или 20 μm/s. В результате были сформированы одиночные полосы сканирования шириной, равной диаметру лазерного пятна d = 100 μm. При этом число лазерных импульсов N_s, воздействующих на единицу площади образца в процессе облучения в каждом случае, определялось по формуле

$$N_s = \frac{vd}{V}. \quad (1)$$

Экспозиции, рассчитанные согласно выражению (1), N_s = 200 и N_s = 50 соответственно. Варьирование величины N_s позволило реализовать режимы как кристаллизации исходной аморфной пленки GST225, так и ее реаморфизации при более длительном облучении.

Изображения поверхности облученных областей получались методом оптической микроскопии (ОМ, Olympus BX41). Фазовый состав исходных и облученных пленок определялся по результатам анализа спектров комбинационного рассеяния света (КРС), измеренных с помощью спектрометра Horiba Jobin Yvon HR800. Длина волны возбуждающего излучения составляла 488 nm, время накопления сигнала 40 s, а число измерений 16.

Теоретическое моделирование

Как известно, облучение полупроводников фемтосекундными лазерными импульсами способствует фотоиндуцированной генерации свободных носителей заряда [12]. Концентрация носителей n_e(x, t), генерируемых в облучаемой пленке GST225, может быть определена путем решения следующего дифференциального уравнения:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} - D \frac{\partial^2 n_e}{\partial x^2} = \frac{\alpha(1-R)I(x, t)}{\hbar\omega} + \frac{\beta(1-R)^2 I^2(x, t)}{2\hbar\omega} - \frac{n_e}{\tau_{ee}}, \quad (2)$$

где D — коэффициент амбиполярной диффузии, ω — частота лазерного излучения, R — коэффициент оптического отражения, I(x, t) — зависимость интенсивности падающего лазерного излучения от времени t и глубины пленки x, α и β — коэффициенты одно- и двухфотонного поглощения GST225 соответственно. Ось OX направлена от поверхности пленки к ее границе

с подложкой. Время межэлектронных столкновений τ_{ee} определяется [13] согласно формуле

$$\tau_{ee} = \frac{\mu m^*}{e}, \quad (3)$$

где μ — подвижность носителей заряда, m^* и e — эффективная масса и заряд электрона соответственно. Значение $I(x, t)$, используемое в (2), определяется с помощью следующего уравнения:

$$I(x, t) = I(t) \exp(-\alpha x) + \frac{I(t)}{1 + \beta x I(t)}, \quad (4)$$

где учитывается одно- и двухфотонное поглощение GST225, а также форма лазерного импульса $I(t)$, описываемая как

$$I(t) = I_0 \exp(-(t - \tau/2)^2/\tau^2), \quad (5)$$

где τ — длительность лазерного импульса. Как видно, концентрация свободных электронов n_e динамически изменяется в зависимости от времени и координат в системе окружающая среда/тонкая пленка/подложка. Как следствие, согласно теории Друде, изменяются диэлектрическая проницаемость материала пленки ε^* , а также линейное оптическое поглощение α^* и коэффициент отражения R^* , учитываемые в уравнении (2):

$$\varepsilon^*(x, t) = \varepsilon - \frac{4\pi e_0^2 n_e(x, t)}{m^* \varepsilon_0 (\omega^2 + \tau_{ee}^{-2})}, \quad (6)$$

$$\alpha^*(x, t) = \frac{2\omega}{c} \text{Im} \varepsilon^*(x, t), \quad (7)$$

$$R^*(x, t) = \left| \frac{\sqrt{\varepsilon^*(x, t)} - 1}{\sqrt{\varepsilon^*(x, t)} + 1} \right|^2. \quad (8)$$

Динамическое изменение таких оптических свойств аморфного и кристаллического GST225, как отражение и линейное поглощение, существенно влияет на воздействие сверхкороткого лазерного импульса в течение его длительности. В этом случае удельная поглощенная мощность от внешнего источника нагрева записывается в следующем виде [14]:

$$S(x, t) = \alpha^*(x, t) (1 - R^*(x, t)) I(x, t) + \beta (1 - R^*(x, t))^2 I^2(x, t). \quad (9)$$

Помимо этого, возбуждение свободных носителей заряда в результате фемтосекундного лазерного облучения кардинально влияет на механизм нагрева GST225. Это связано с термализацией плазмы, а также последующей релаксацией энергии, поглощенной свободными электронами, в кристаллическую решетку [14]. Система связанных друг с другом уравнений теплопроводности для свободных электронов и решетки записывается следующим образом:

$$\rho c_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = k_e \frac{\partial^2 T_e}{\partial x^2} - g(T_e - T_l) + S(x, t), \quad (10)$$

$$\rho c_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = k_l \frac{\partial^2 T_l}{\partial x^2} + g(T_e - T_l), \quad (11)$$

где ρ — плотность вещества, c_e и k_e — электронная теплоемкость и электронный коэффициент теплопроводности, g — постоянная электронно-решеточной релаксации, c_l и k_l — теплоемкость и коэффициент теплопроводности решетки, T_e и T_l — электронная и решеточная температуры соответственно. Значения c_e и k_e зависят от определяемой из уравнения (2) концентрации свободных носителей заряда $n_e(x, t)$ согласно следующим формулам:

$$c_e = \frac{3}{2} k_b n_e, \quad (12)$$

$$k_e = \frac{8k_b^2}{3\pi m^*} n_e T_e, \quad (13)$$

где $k_b = 1.38 \cdot 10^{-23}$ J/K — постоянная Больцмана. Постоянная электронно-решеточной релаксации определяется как

$$g = \frac{c_e}{\tau_{e-h}}, \quad (14)$$

где τ_{e-h} — время электронно-решеточной релаксации.

Система уравнений (2)–(14) была численно решена методом конечных разностей с помощью программного обеспечения MatLab, используя прямоугольную сетку. Начальные условия, использованные в расчетах, $n_e = 0 \text{ cm}^{-3}$ и $T_e = T_l = 293 \text{ K}$ при $t = 0$. Время t отсчитывается от начала воздействия на пленку лазерным импульсом. В вычислениях по координате и времени использовались шаги $\Delta x = 1 \text{ nm}$ и $\Delta t = 1 \text{ fs}$ соответственно. Значения физических величин, использованных в численном моделировании, представлены в таблице.

Результаты и обсуждение

На изображениях ОМ (рис. 1), полученных в отраженном свете, необлученные области тонких пленок GST225 имеют темный цвет [11].

При этом область, облученная последовательно фемтосекундных лазерных импульсов с $N_s = 50$ (рис. 1, а), становится более светлой, что может свидетельствовать о ее кристаллизации [11], так как в видимом диапазоне 400–800 nm коэффициент отражения кристаллического GST225 на $\Delta R = 0.3$ больше, чем аморфного GST225 [15].

Анализ облученной и необлученной областей методом спектроскопии КРС показал следующие различия. Спектр КРС исходной пленки GST225 представляет собой асимметричную широкую полосу в диапазоне волновых чисел 100–250 cm^{-1} (рис. 2, а). Данная широкая полоса в спектре обусловлена ближним порядком аморфной фазы GST225 и является следствием наложения сигналов от пяти линий [19] с максимумами около 126, 141, 158, 190 и 215 cm^{-1} . Линии вблизи волновых чисел 126, 190 и 215 cm^{-1} связаны с модой A_1 колебаний тетраэдров $\text{GeTe}_{4-n}\text{Ge}_n$ ($n = 1, 2$) [20]. При этом линия

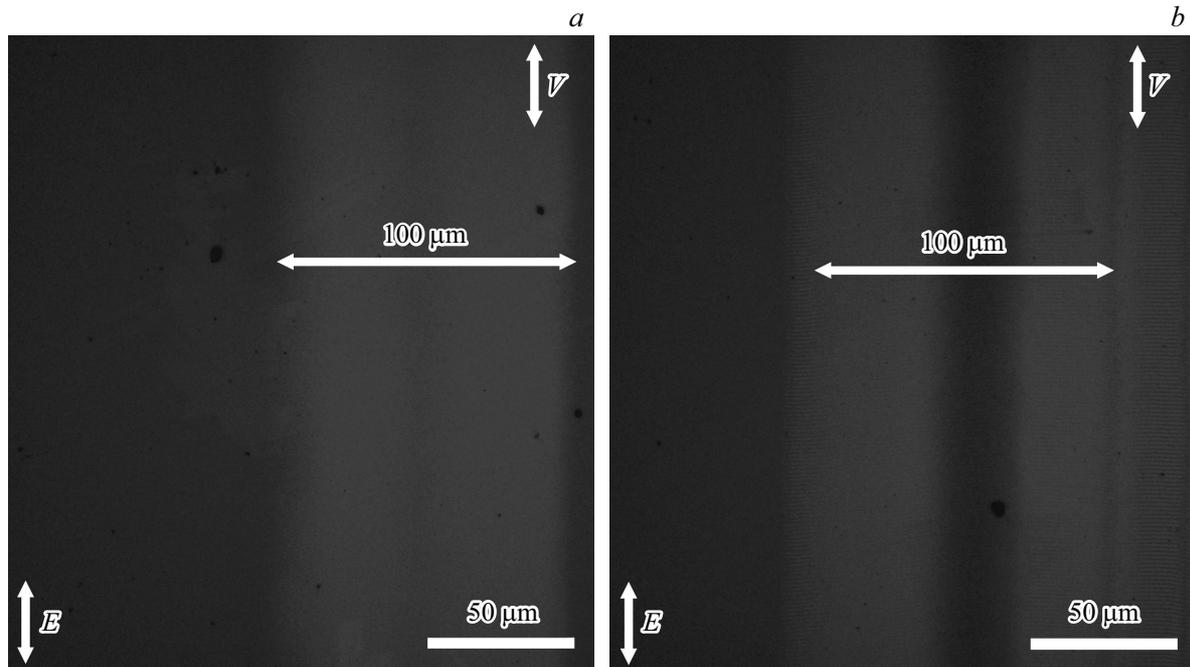


Рис. 1. Оптические изображения тонких пленок GST225, облученных $N_s = 50$ (a) и $N_s = 200$ (b) фемтосекундными лазерными импульсами с плотностью энергии 0.1 J/cm^2 .

Значения параметров, использованных в вычислениях в рамках моделирования динамики тепловых процессов при облучении аморфных тонких пленок GST225 фемтосекундными лазерными импульсами

Диэлектрическая проницаемость необлученного аморфного GST225 (ϵ)	$18.2 + 2.06i$ [15]
Диэлектрическая проницаемость необлученного кристаллического GST225 (ϵ)	$45.3 + 28.3i$ [15]
Коэффициент оптического отражения аморфного GST225 (R)	0.36 [15]
Коэффициент оптического отражения ГЦК кристаллического GST225 (R)	0.58 [15]
Линейное оптическое поглощение аморфного GST225 (α)	$24\,500 \text{ cm}^{-1}$ [15]
Линейное оптическое поглощение кристаллического GST225 (α)	$185\,000 \text{ cm}^{-1}$ [15]
Нелинейное оптическое поглощение GST225 (β)	0.5 cm/GW [16]
Эффективная масса (m^*)	$0.68m_0$ [17]
Подвижность заряда (μ)	$52 \text{ cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$ [17]
Коэффициент амбиполярной диффузии (D)	$2 \text{ cm}^2/\text{s}$ [7]
Время электронно-фононной релаксации (τ_{e-h})	2 ps [18]
Плотность GST225 (ρ)	$6 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$ [18]
Теплоемкость решетки GST225 (c_l)	$220 \text{ J}/(\text{kg} \cdot \text{K})$ [18]

вблизи 215 cm^{-1} может также соответствовать моде F_2 тетраэдров GeTe_4 [20]. Остальные линии обусловлены вкладом Sb_2Te_3 : максимум вблизи 141 cm^{-1} относится к пирамидальным структурным единицам Sb_2Te_3 [21], а линия вблизи 158 cm^{-1} соответствует моде A_{1g}^2 структуры Sb_2Te_3 . Спектры КРС образцов, облученных при $N_s = 50$, также представляют собой асимметричную широкую полосу в диапазоне $100\text{--}250 \text{ cm}^{-1}$ (рис. 2, b), аналогично раскладываемую на 5 линий. Однако, как видно из рис. 2, соотношение интенсивностей между данными линиями отличается. В частности, наблюдаются падение сигнала от линии около 158 cm^{-1} и рост интегральной интенсивности линий вблизи 126 cm^{-1} и 141 cm^{-1} . Данные изменения могут свидетельствовать о кристаллизации аморфной пленки GST225 в гранецентрированную кубическую (ГЦК) кристаллическую фазу за счет перестроения структурных единиц GeTe_4 . Такой фазовый переход GST225 из аморфного состояния в кристаллическую фазу [21] может быть достижим при температурах выше 410 K [5].

При более длительном облучении в режиме с $N_s = 200$ (рис. 1, b) в центре полосы сканирования наблюдается появление такой же темной области, что и на необлученных участках пленки. Данный эффект может быть вызван реаморфизацией [11]. Дополнительно наблюдаются поверхностные решетки с периодом, примерно равным длине волны структурирующего излучения, и ориентацией перпендикулярно поляризации последнего. Они являются результатом интерференции генерируемых при интенсивном фотовозбуждении поверхностных плазмон-поляритонов с падающим излуче-

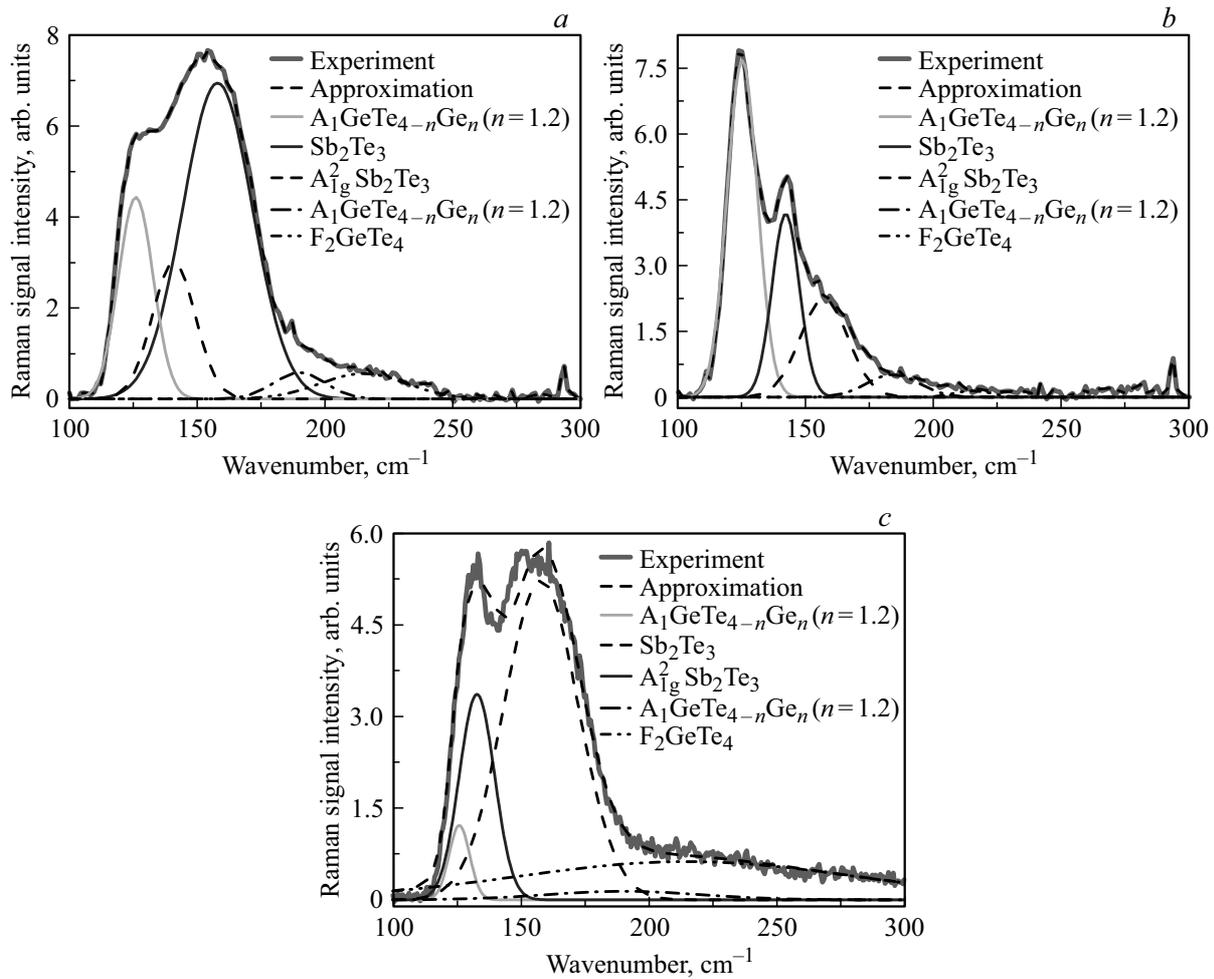


Рис. 2. Спектры КРС тонких пленок GST225 до (a) и после облучения $N_s = 50$ (b) и $N_s = 200$ (c) фемтосекундными лазерными импульсами с плотностью энергии 0.1 J/cm^2 .

нием [22]. В спектре КРС в центре полосы сканирования лазерным лучом наблюдаются следующие изменения. Интегральная интенсивность линии около 126 cm^{-1} падает, в то время как у линий вблизи 141 cm^{-1} и 158 cm^{-1} , напротив, растет (рис. 2, c). Таким образом, спектр КРС приобретает вид, близкий к исходному необлученному GST225 (рис. 2, a), что наряду с изменением оптического отражения, продемонстрированного с помощью ОМ, может свидетельствовать в пользу реаморфизации при увеличении числа экспонирующих лазерных импульсов [22]. Таким образом, в результате воздействия фемтосекундными лазерными импульсами, вероятно, наблюдается обратимый фазовый переход, который, согласно [10], реализуется при нагреве выше температуры плавления GST225 880 K с последующим охлаждением со скоростью более 10 K/ns .

Теоретически подтвердить сделанные предположения о кристаллизации и реаморфизации тонкой пленки GST225 в различных режимах облучения фемтосекундными лазерными импульсами можно путем анализа динамики температур электронов и решетки в рамках

двухтемпературной модели [14,23] по методике расчета, описанной в разделе „Теоретическое моделирование“.

Как показали результаты численного моделирования (рис. 3, a), на поверхности аморфной тонкой пленки GST225 ($x = 0 \text{ nm}$) при $N_s = 50$ наблюдается одновременное повышение электронной и решеточной температур в течение 300 fs после начала воздействия лазерного импульса. Значение температуры решетки принимает в этот момент времени максимальное значение 510 K . Согласно [5,24], полученное значение превышает температуру перехода аморфного GST225 в ГЦК кристаллическую фазу (410 K). Далее решеточная температура начинает снижаться со скоростью 80 K/ns (рис. 3, c). В то же время электронная температура, напротив, продолжает демонстрировать рост до значения 550 K , достигаемого при $t = 800 \text{ fs}$. При этом решение уравнения (2) показывает, что в данный момент $n_e(0 \text{ nm}, 800 \text{ fs}) \approx 0$. Это может быть объяснено термализацией фотовозбужденных носителей заряда, в том числе через механизм столкновения свободных электронов друг с другом [25], характерное время которого в GST225 составляет около

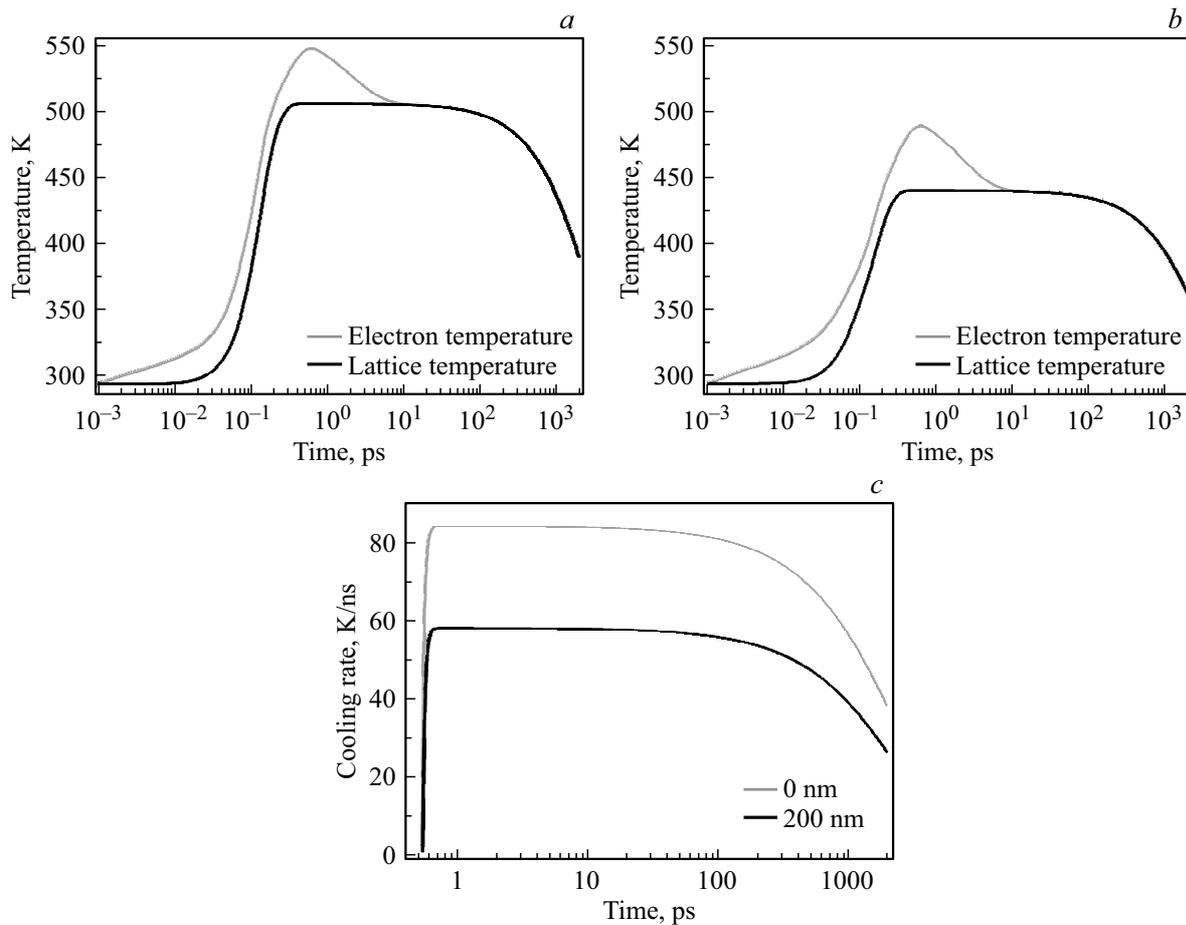


Рис. 3. Временные зависимости электронной и решеточной температур на поверхности тонкой пленки при $x = 0$ nm (a) и на границе с подложкой при $x = 200$ nm (b) при облучении аморфных тонких пленок GST225 $N_s = 50$ лазерными импульсами с плотностью энергии $F = 0.1$ J/cm²; скорость охлаждения решеточной температуры на поверхности пленки и на границе с подложкой (c).

200 fs [13]. Аналогичная тенденция, но при меньших значениях температур наблюдается и на границе между тонкой пленкой и подложкой при $x = 200$ nm (рис. 3, b). Решеточная температура увеличивается до значения около 440 K в течение 300 fs после начала действия лазерного импульса. Достигнутое значение температуры так же, как и при $x = 0$ nm, превышает температуру перехода аморфного GST225 в ГЦК кристаллическую фазу 410 K, что свидетельствует о возможности кристаллизации по всей толщине пленки при заданных параметрах лазерного излучения. Этому способствует то, что в аморфном GST225 глубина проникновения оптического излучения с длиной волны 1250 nm $1/\alpha \approx 400$ nm [15] больше толщины пленки. Дальнейшее охлаждение решетки происходит со скоростью около 60 K/ns (рис. 3, c). В это же время при $x = 200$ nm электронная температура спустя $t = 800$ fs после начала действия лазерного импульса достигает значения 505 K, после чего начинает снижаться, как и в случае изменения температуры у поверхности при $x = 0$ nm (рис. 2, b).

Полученные результаты свидетельствуют о медленном охлаждении облученной системы, что является дополнительным фактором, способствующим кристаллизации халькогенидного соединения [6]. Охлаждение до пороговой температуры кристаллизации (410 K) происходит за времена около 1 ns по всей толщине пленки (рис. 3, a, b). Тем не менее сам процесс кристаллизации может происходить быстрее: согласно проведенным недавно экспериментам по измерению оптического отражения методом „накачка–зонд“ [7], кристаллизация в тонких пленках GST225 в результате фемтосекундного лазерного облучения может наблюдаться на временах порядка 100 ps, что на три порядка меньше, чем для кристаллизации при непрерывном лазерном воздействии [2].

Вычисления в рамках двухтемпературной модели также позволили описать кинетику потенциальной реаморфизации ранее закристаллизованных областей тонких пленок GST225 при облучении большим числом лазерных импульсов $N_s = 200$, когда моделируется нагрев уже закристаллизованной области, поглощение которой заметно выше, чем для аморфной фазы (таблица), что

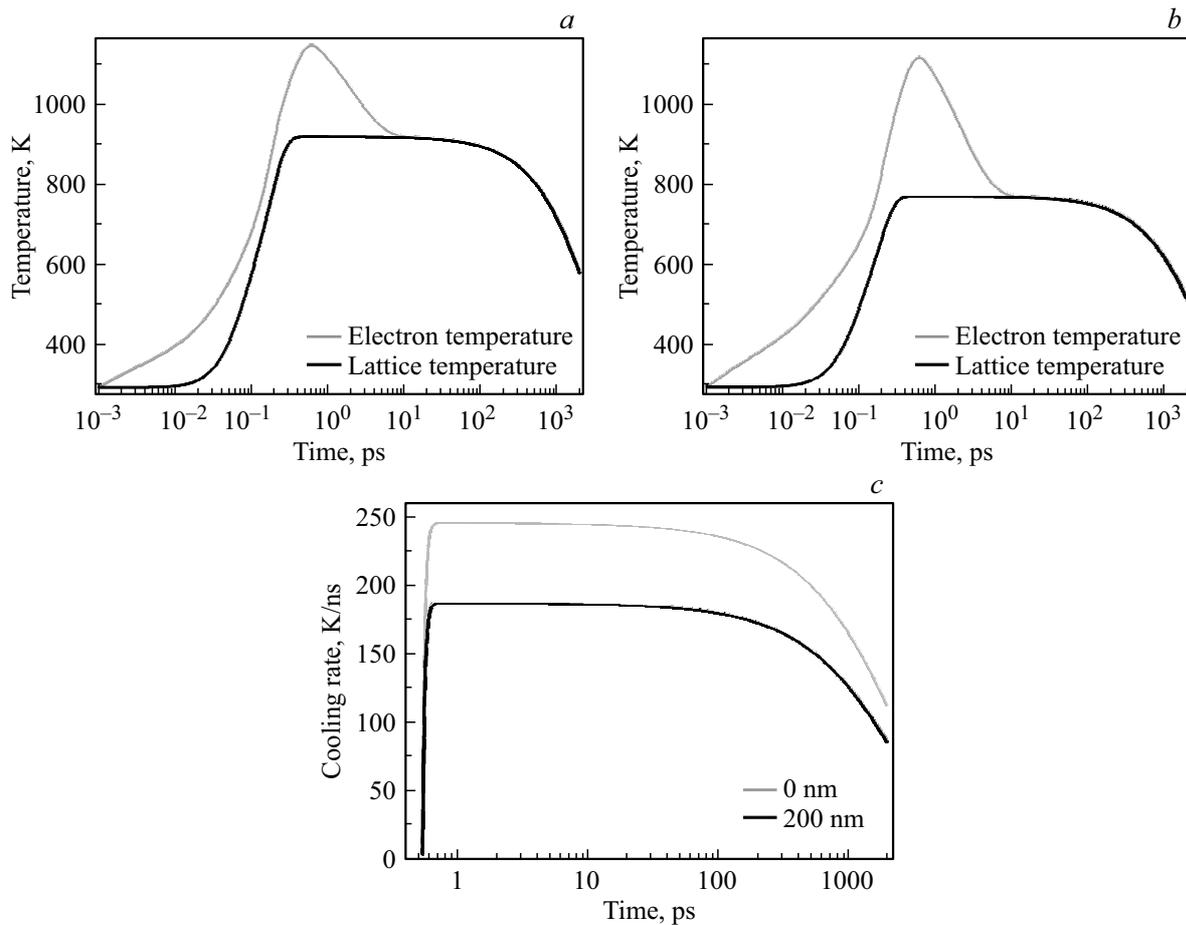


Рис. 4. Временные зависимости электронной и решеточной температуры на поверхности тонкой пленки при $x = 0$ nm (a) и на границе с подложкой при $x = 200$ nm (b) при облучении лазерно закристаллизованных тонких пленок GST225 $N_s = 200$ лазерными импульсами с плотностью энергии $F = 0.1$ J/cm²; скорость охлаждения решеточной температуры на поверхности пленки и на границе с подложкой (c).

приводит к большему нагреву. В частности, на поверхности тонкой пленки ($x = 0$ nm) решетка кристаллического GST225 в течение $t = 600$ fs после начала воздействия лазерного импульса нагревается до температуры ≈ 915 K (рис. 4, a). Данное значение превышает температуру плавления GST225 (880 K) [23], достижение которой является одним из условий протекания аморфизации [2]. Далее происходит охлаждение расплава с относительно высокой скоростью 250 K/ns, которая на порядок больше требуемого для аморфизации значения 10 K/ns (рис. 4, c) [10]. За счет высокой скорости охлаждения и разности в 35 K между максимальной температурой решетки и температурой плавления затвердевание аморфного слоя происходит за время ~ 100 ps, что соответствует предельным временам переключения оптических характеристик в результате фазовых переходов в GST225 [7]. В то же время на границе между пленкой и подложкой ($x = 200$ nm) решетка кристаллического GST225 нагревается лишь до температуры около 770 K (рис. 4, b), что меньше температуры плавления GST225, и означает невозможность реаморфизации кристалли-

ческого GST225 по всей глубине пленки, хотя скорость охлаждения остается достаточно высокой и на промежутке в единицы пикосекунд превышает значение 170 K/ns (рис. 4, c). Это связано с тем, что глубина проникновения оптического излучения с длиной волны 1250 nm в ГЦК кристаллической фазы GST225 составляет $1/\alpha \approx 20$ nm [15], что значительно меньше, чем для аморфного GST225. Таким образом, падающее лазерное излучение интенсивно поглощается в приповерхностной области, и переход ГЦК кристаллической фазы GST225 в аморфное состояние возможно лишь на небольшой глубине тонкой пленки.

Решением проблемы неполной кристаллизации по глубине могло бы стать увеличение плотности потока энергии структурирующего излучения и соответствующее увеличение максимальной температуры нагрева решетки. Однако в этом случае время остывания расплава ниже температуры перехода в аморфную фазу тоже бы увеличилось. Тем не менее следует учитывать, что проведенные расчеты времен остывания для процессов кристаллизации и аморфизации являются оценками

сверху для времен фазовых переходов и изменения оптических свойств тонких пленок GST225 в результате фемтосекундного лазерного облучения.

Выводы

Проведенное исследование показало, что под воздействием различного числа фемтосекундных лазерных импульсов в изначально аморфных тонких пленках GST225 возможны фазовые переходы в кристаллическое состояние и обратимый переход в аморфную фазу. Полученный результат экспериментально подтверждается анализом спектров КРС и изображениями ОМ, а теоретически — моделированием в рамках двухтемпературной модели с использованием для расчетов характеристик используемых лазерных импульсов и параметров GST225 в аморфной и кристаллической фазах. Анализ кинетики температур электронов и решетки показывает, что в зависимости от режима облучения на субпикосекундных временах возможен нагрев тонкой пленки GST225 до температур выше порога 410 К для перехода в ГЦК кристаллическую фазу или выше 880 К для плавления с последующим быстрым затвердеванием в аморфное состояние. Характерные времена остывания тонкой пленки ниже данных порогов находятся в диапазоне 100 ps–1 ns в зависимости от режима облучения, что свидетельствует о возможном уменьшении времен описанных фазовых переходов на 2–3 порядка по сравнению с хорошо изученным случаем применения непрерывного лазерного излучения.

Полученные результаты представляют интерес для разработки новых технологий записи и перезаписи информации в тонких пленках GST225 под действием фемтосекундных лазерных импульсов.

Финансирование работы

Исследования структурных свойств облученных образцов и моделирование кинетики фазовых переходов поддержаны грантом РФФИ № 20-32-90111. Образцы аморфных тонких пленок GST225 были сформированы в научно-исследовательской лаборатории „Материалы и устройства активной фотоники“ при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (Соглашение № 075-03-2022-212/4 от 08.11.2022г., FSMR-2022-0001). Выбор оптимальных стратегий облучения образцов и соответствующая модернизация фемтосекундной лазерной установки для инициации фазовых переходов выполнены в рамках проекта „Новые подходы к проектированию систем считывания для технологии трехмерной оптической памяти с многоуровневым кодированием“, поддерживаемого Министерством науки и высшего образования Российской Федерации по Договору МГУ имени М.В. Ломоносова с Фондом поддержки проектов Национальной технологической инициативы от 15.12.2021 г. № 70-2021-00252.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] С.А. Козюхин, П.И. Лазаренко, А.И. Попов, И.Л. Еременко. Успехи химии, **91** (9), RCR5033 (2022). DOI: 10.1070/RCR5033. [S.A. Kozyukhin, P.I. Lazarenko, A.I. Popov, I.L. Eremenko. Russ. Chem. Rev., **91** (9), RCR5033 (2022). DOI: 10.1070/RCR5033].
- [2] V. Weidenhof, I. Friedrich, S. Ziegler, M. Wuttig. J. Appl. Phys., **89**, 3168 (2001). DOI: 10.1063/1.1351868
- [3] Y. Vorobyov, P. Lazarenko, A. Sherchenkov, N. Vishnyakov, A. Ermachikhin, S. Kozyukhin. J. Phys.: Condens. Matter, **32**, 355401 (2020). DOI: 10.1088/1361-648X/ab8c8a
- [4] J. Tominaga, T. Shima, P. Fons, R. Simpson, M. Kuwahara, A. Kolobov. Jpn. J. Appl. Phys., **48**, 03A053 (2009). DOI: 10.1143/JJAP.48.03A053
- [5] А.А. Шерченков, С.А. Козюхин, П.И. Лазаренко, А.В. Бабич, Н.А. Богословский, И.В. Сагунова, Е.Н. Редичев. ФТП, **51** (2), 154 (2017). DOI: 10.21883/FTP.2017.02.44096.8270 [A.A. Sherchenkov, S.A. Kozyukhin, P.I. Lazarenko, A.V. Babich, N.A. Bogoslovskiy, I.V. Sagunova, E.N. Redichev. Semiconductors, **51**, 146–152 (2017). DOI: 10.1134/S1063782617020191].
- [6] Н.А. Богословский, К.Д. Цэндин. ФТП, **46** (5), 577 (2012). DOI: 10.1134/S1063782612050065 [N.A. Bogoslovskiy, K.D. Tsendin. Semiconductors, **46**, 559 (2012). DOI: 10.1134/S1063782612050065].
- [7] H. Wu, W. Han, X. Zhang. Materials, **15**, 6760 (2022). DOI: 10.3390/ma15196760
- [8] Y.H. Wang, F.R. Liu, W.Q. Li, T. Fan, J.F. Yang, Z.M. Wang, F. Liu, N.X. Sun. J. App. Phys., **122**, 043104 (2017). DOI: 10.1063/1.4993451
- [9] T. Kunkel, Y. Vorobyov, M. Smayev, P. Lazarenko, A. Romashkin, S. Kozyukhin. Materials Science in Semiconductor Processing, **139**, 10350 (2022). DOI: 10.1016/j.mssp.2021.106350
- [10] N. Yamada, E. Ohno, K. Nishiuchi, N. Akahira, M. Takao. J. Appl. Phys., **69**, 2849 (1991). DOI: 10.1063/1.348620
- [11] T. Kunkel, Y. Vorobyov, M. Smayev, P. Lazarenko, V. Veretennikov, V. Sigaev, S. Kozyukhin. J. Alloys and Compounds, **851**, 156924 (2021). DOI: 10.1016/j.jallcom.2020.156924
- [12] Г.А. Марциновский, Г.Д. Шандыбина, Ю.С. Деметьева, Р.В. Дюкин, С.В. Заботнов, Л.А. Головань, П.К. Кашкаров. ФТП, **43** (10), 1339 (2009). DOI: 10.1134/S106378260910008X [G.A. Martsinovsky, G.D. Shandybina, Yu.S. Dement'eva, R.V. Dyukin, S.V. Zabolnov, L.A. Golovan', P.K. Kashkarov. Semiconductors, **43**, 1298 (2009). DOI: 10.1134/S106378260910008X].
- [13] P.Y. Yu, M. Cardona. *Fundamentals of Semiconductors: Physics and Materials Properties* (Springer, Berlin, 2010). DOI: 10.1007/978-3-642-00710-1
- [14] J.K. Chena, D.Y. Tzou, J.E. Beraun. Int. J. Mass Heat Transfer, **49**, 307 (2006). DOI: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2005.06.022
- [15] P.I. Lazarenko, Yu.V. Vorobyov, M.E. Fedyanina, A.A. Sherchenkov, S.A. Kozyukhin, A.O. Yakubov, A.V. Kukin, Yu.S. Sybina, I.V. Sagunova. Inorg. Mater. Appl. Res., **11**, 330 (2020). DOI: 10.1134/S2075113320020227

- [16] S. Liu, J. Wei, F. Gan. *J. Appl. Phys.*, **110** (3), 033503 (2011). DOI: 10.1063/1.3614501
- [17] L.E. Shelimova, O.G. Karpinskii, P.P. Konstantinov, M.A. Kretova, E.S. Avilov, V.S. Zemskov. *Inorganic Materials*, **37** (4), 342 (2001). DOI: 10.1023/A:1017519625907
- [18] S.H. Møller, E.H. Eriksen, P.L. Tønning, P.B. Jensen, J. Chevallier, P. Balling. *Appl. Surf. Sci.*, **476**, 221 (2019). DOI: 10.1016/j.apsusc.2019.01.070
- [19] P. Němec, V. Nazabal, A. Moreac, J. Gutwirth, L. Beneš, M. Frumar. *Materials Chemistry and Physics*, **136**, 935 (2012). DOI: 10.1016/j.matchemphys.2012.08.024
- [20] Z. Xu, C. Chen, Z. Wang, K. Wu, H. Chong, H. Ye. *RSC Advances*, **8** (37), 21040 (2018). DOI: 10.1039/C8RA01382A
- [21] K. Shportko, L. Revutska, O. Paiuk, J. Baran, A. Stronski, A. Gubanova, E. Venger. *Optical Materials*, **73**, 489 (2017). DOI: 10.1016/j.optmat.2017.08.042
- [22] S. Zaboltnov, A. Kolchin, D. Shuleiko, D. Presnov, T. Kamin-skaya, P. Lazarenko, V. Glukhenkaya, T. Kunkel, S. Kozyukhin, P. Kashkarov. *Micro*, **2** (1), 88 (2022). DOI: 10.3390/micro2010005
- [23] W.Zhou, Z. Zhang, Q. Zhang, D. Qi, T. Xu, S. Dai, X. Shen. *Micromachines*, **12**, 616 (2021). DOI: 10.3390/mi12060616
- [24] J.-L. Battaglia, A. Kusiak, V. Schick, A. Cappella, C. Wiemer, M. Longo, E. Varesi. *J. Appl. Phys.*, **107**, 044314 (2010). DOI: 10.1063/1.3284084
- [25] A. Shamova, G. Shandybina, E. Yakovlev, A. Georgieva. *Optical Quantum Electron.*, **49**, 74 (2017). DOI: 10.1007/s11082-017-0911-0