

Сверхбыстрый фазовый переход полупроводник–металл в двуокиси ванадия под действием фемтосекундного лазерного импульса

© А.Л. Семенов

Ульяновский государственный университет,
432970 Ульяновск, Россия

E-mail: smnv@mail.ru

(Поступила в Редакцию 21 декабря 2004 г.)

Предложена модель фотоиндуцированного фазового перехода полупроводник–металл пайерлсовского типа, в рамках которой найдены зависимость ширины запрещенной зоны электронного спектра двуокиси ванадия от времени t в световом поле и зависимость времени τ фотоиндуцированного фазового перехода полупроводник–металл от длительности τ_p лазерного импульса. Полученные теоретические результаты согласуются с экспериментальными данными по облучению пленки VO_2 мощным лазерным импульсом.

Из эксперимента [1] известно, что под действием мощного лазерного импульса пленка двуокиси ванадия на подложке переходит из полупроводникового состояния в металлическое, нагреваясь при этом менее чем на 10 К [2]. Данный фазовый переход не может быть объяснен в рамках тепловой модели, поскольку для развития тепловой неустойчивости требуется нагревание пленки VO_2 приблизительно на 50 К (до 340 К) [3]. Нетепловой ($t < 1$ ps) и тепловой ($t \approx 3\text{--}15$ ps) этапы развития фотоиндуцированного фазового перехода полупроводник–металл экспериментально наблюдались при облучении VO_2 лазерным импульсом с длительностью $\tau_p \cong 50$ fs [4]. В эксперименте [5] пленка двуокиси ванадия облучалась лазерным импульсом с плотностью энергии $W \cong 50$ мДж/см² и энергией фотонов $\hbar\omega \cong 1.6$ eV. Измерялась зависимость времени τ фотоиндуцированного фазового перехода полупроводник–металл от длительности τ_p лазерного импульса при изменении τ_p от 15 до 1000 fs [5]. Полученная экспериментальная зависимость, насколько нам известно, ранее не получила теоретического объяснения.

В настоящей работе проведено теоретическое исследование динамики фотоиндуцированного фазового перехода полупроводник–металл в двуокиси ванадия. Рассмотрен нетепловой механизм развития неустойчивости. Получено уравнение для параметра порядка ξ фазового перехода металл–полупроводник в световом поле. Найдена зависимость ширины запрещенной зоны электронного спектра от времени. Рассчитано время фотоиндуцированного фазового перехода τ в зависимости от длительности τ_p падающего светового импульса. На основе развитой теории проведена интерпретация экспериментальных данных [5] по облучению пленки двуокиси ванадия на подложке мощным лазерным импульсом.

1. Основные уравнения

В электронном спектре двуокиси ванадия имеется квазиодномерная зона, образованная вследствие перекрытия $3d$ -электронных волновых функций атомов ва-

надия, расположенных в виде параллельных цепочек [3]. Интеграл перекрытия волновых функций вдоль цепочек существенно больше, чем в перпендикулярном направлении, что позволяет рассматривать данную систему в рамках одномерной модели.

Рассмотрим цепочку атомов, на каждом из которых находится по одному внешнему электрону. Известно, что при температуре T ниже некоторого критического значения T_0 эквидистантное расположение атомов в цепочке неустойчиво по отношению к их попарному сближению [6]. При этом в электронном спектре на уровне Ферми образуется запрещенная зона.

Координату x_n n -го атома ванадия в цепочке запишем в виде

$$x_n = na + \frac{(-1)^n R \xi}{2}, \quad (1)$$

где a — атомное расстояние в металлической фазе, ξ — параметр попарного сближения атомов в цепочке (параметр порядка фазового перехода металл–полупроводник), R — эффективный радиус волновой функции электрона в атоме. Эволюция параметра порядка ξ во времени описывается уравнением Лагранжа

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{\xi}} - \frac{\partial L}{\partial \xi} = Q, \quad (2)$$

где Q — обобщенная диссипативная сила, соответствующая обобщенной координате ξ , L — функция Лагранжа,

$$L = \sum_n \frac{m \dot{x}_n^2}{2} - F_1 - F_2 - F_c, \quad (3)$$

m — масса атома,

$$F_c = \frac{A \xi^2}{2} - \quad (4)$$

свободная энергия кристаллической решетки, записанная в гармоническом приближении, учитывающем только первый не исчезающий член разложения в ряд Тейлора по параметру порядка ξ (A — коэффициент разложения), F_j — свободная энергия электронной подсистемы

валентной зоны ($j = 1$) и зоны проводимости ($j = 2$),

$$F_j = \mu_j N_j - 2k_B T \sum_k \ln \left(1 + \exp \left(\frac{\mu_j - \varepsilon_j(k)}{k_B T} \right) \right), \quad (5)$$

$\mu_j, N_j, \varepsilon_j(k)$ — соответственно квазиуровень Ферми, число электронов и закон дисперсии j -й зоны, T — температура, k_B — постоянная Больцмана. Коэффициент 2 перед знаком суммы в (5) учитывает спиновое вырождение. Закон дисперсии $\varepsilon_j(k)$ электронов из d -зоны для цепочки атомов ванадия (1) в двуокиси ванадия имеет вид [7]

$$\varepsilon_{1,2}(k) = \mp 2b \sqrt{\cos^2 k + \text{sh}^2 \xi}, \quad (6)$$

где $4b$ — ширина зоны проводимости в металлической фазе (при $\xi = 0$), $k = -\pi + 2\pi s/N_0$, $s = 1, 2, \dots, N_0$, N_0 — число атомов в цепочке.

Подставляя (3) в (2), с учетом (1), (4)–(6) получаем

$$\ddot{\xi} = \frac{4}{N_0 m R^2} \left(Q N_0 - A \xi - 2 \sum_{k,j} \frac{\partial \varepsilon_j(k)}{\partial \xi} n_j(k) \right), \quad (7)$$

где

$$n_j(k) = \left(1 + \exp \left(\frac{\varepsilon_j(k) - \mu_j}{k_B T} \right) \right)^{-1} \quad (8)$$

число заполнения электронами k -го уровня j -ой зоны.

Вычисляя приближенно сумму в (7), в приближении времени релаксации ($Q \sim \dot{\xi}$) при $\xi < 1$ находим

$$\ddot{\xi} + \gamma \dot{\xi} = - \frac{4}{N_0 m R^2} \times \left(\frac{4b N_0}{\pi} \xi \ln \xi + 2b(N_0 - N_1 + N_2) + A \xi \right), \quad (9)$$

где γ^{-1} — характерное время фоновой релаксации. При $T = 0$ в отсутствие облучения все электроны находятся в валентной зоне: $N_1 = N_0$, $N_2 = 0$, а параметр порядка фазового перехода металл–полупроводник $\xi = \xi_0$. Отсюда из (9) получаем

$$A = - \frac{4b N_0}{\pi} \ln \xi_0, \quad (10)$$

$$\ddot{\xi} + \gamma \dot{\xi} = \frac{4b}{\pi m R^2} \left(\xi \ln \frac{\xi_0}{\xi} - \frac{\pi}{2N} (n + p) \right), \quad (11)$$

где N, n, p — концентрации атомов ванадия, электронов в d -зоне проводимости и дырок в валентной d -зоне соответственно.

Зависимость концентрации дырок от времени описывается кинетическим уравнением [8]

$$\dot{p} = \frac{(1-r)\alpha I}{\hbar\omega} - \frac{p}{\tau_1}, \quad (12)$$

где α, r — соответственно коэффициенты оптического поглощения и отражения, ω, I — частота и интенсивность светового поля, $\tau_1(p, \xi)$ — время рекомбинации. Предполагается, что толщина пленки много меньше длины затухания оптического излучения $1/\alpha$.

2. Результаты численного анализа

При численном решении уравнений (11), (12) использовались следующие значения параметров [3,9]: концентрация атомов ванадия $N \cong 3 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, ширина d -зоны проводимости в металлической фазе $4b \cong 1.1 \text{ eV}$, ширина запрещенной зоны электронного спектра (6) в низкотемпературной полупроводниковой фазе $\varepsilon_0 = 4b \text{sh} \xi_0 \cong 0.6 \text{ eV}$, масса атома ванадия $m \cong 8.5 \cdot 10^{-23} \text{ г}$, эффективный радиус атомной волновой функции электрона в $3d$ -состоянии $R \cong 4.1 \cdot 10^{-9} \text{ см}$. Для фотонов с энергией $\hbar\omega \cong 1.6 \text{ eV}$ коэффициент оптического отражения $r \cong 0.2$ [5], коэффициент оптического поглощения $\alpha \cong 2.3 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}$. Характерное время фоновой релаксации при комнатной температуре $\gamma^{-1} \approx 5 \cdot 10^{-13} \text{ с}$ [10].

В условиях эксперимента [5] под действием фотонов с энергией $\hbar\omega \cong 1.6 \text{ eV}$ электроны возбуждались из валентной d -зоны в π -зону проводимости. При концентрации неравновесных электронов $n_\pi \sim 10^{20} \text{ см}^{-3}$ [2] их эффективное время жизни в π -зоне проводимости $\sim 10^{-9} \text{ с}$ [1]. Поэтому при концентрации $n_\pi \sim 10^{21} \text{ см}^{-3}$ на временах $t < 10^{-12} \text{ с}$ вторым слагаемым в правой части уравнения (12) можно пренебречь. В (11) концентрация электронов в d -зоне проводимости $n \ll p$.

Зависимость интенсивности светового поля I от времени t выбиралась в форме гауссова импульса

$$I(t) = \frac{2W}{\sqrt{\pi}\tau_p} \exp \left(- \left(\frac{2t}{\tau_p} \right)^2 \right), \quad (13)$$

где W, τ_p — соответственно плотность энергии и длительность импульса. Численный анализ уравне-

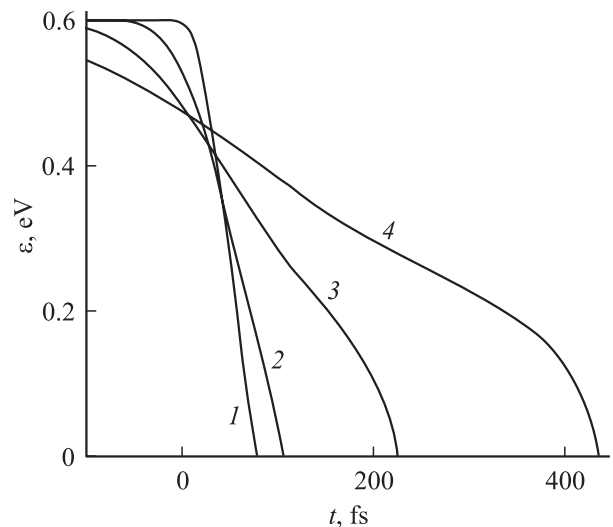


Рис. 1. Зависимость ширины запрещенной зоны электронного спектра ε от времени t при облучении системы световым импульсом с интенсивностью (13), плотностью энергии $W = 50 \text{ мДж/см}^2$ и длительностью $\tau_p = 20$ (1) 100 (2), 200 (3) и 400 fs (4).

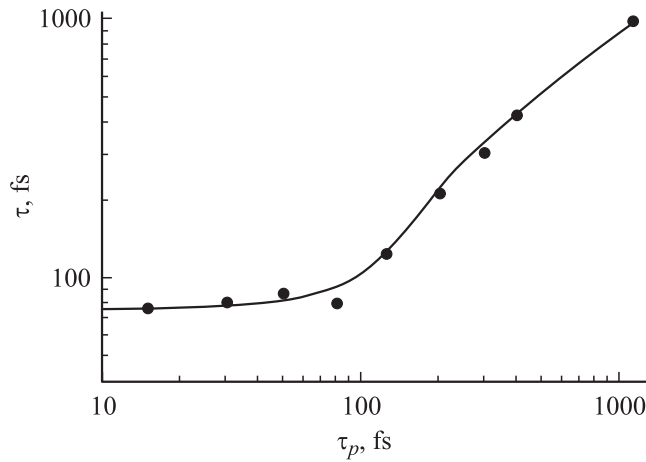


Рис. 2. Зависимость времени τ фотоиндуцированного фазового перехода полупроводник–металл в двуокиси ванадия от длительности τ_p лазерного импульса с плотностью энергии $W = 50 \text{ mJ/cm}^2$. Линия — расчет по формулам (11)–(13), точки — экспериментальные данные работы [5].

ний (11)–(13) проводился при начальных условиях

$$p(t = -2\tau_p) = 0, \quad \varepsilon(t = -2\tau_p) = 0.6 \text{ eV}. \quad (14)$$

Графики рассчитанных по уравнениям (11), (12) зависимостей ширины запрещенной зоны $\varepsilon = 4b \text{ sh } \xi$ электронного спектра (6) двуокиси ванадия от времени t при облучении световым полем с интенсивностью (13) при начальных условиях (14) показаны на рис. 1. Из этого рисунка видно, что с течением времени ширина запрещенной зоны ε уменьшается до нуля. Обращение ε в нуль соответствует фотоиндуцированному фазовому переходу полупроводник–металл. Время фазового перехода τ увеличивается при росте τ_p . График вычислений по формулам (11)–(13) зависимости $\tau(\tau_p)$ приведен на рис. 2, точками показаны экспериментальные данные работы [5]. Видно, что имеется достаточно хорошее согласие результатов, полученных в рамках предложенной модели, с экспериментальными данными.

В заключение отметим, что сверхбыстрые ($t \sim 10^{-13} \text{ s}$) фотоиндуцированные фазовые переходы в новое кристаллическое или аморфное состояние экспериментально наблюдались в Si и GaAs. В основе механизма данных переходов лежит электрон-фононное взаимодействие [8,11], что роднит их с рассмотренным в настоящей работе фотоиндуцированным фазовым переходом полупроводник–металл в двуокиси ванадия.

Список литературы

- [1] А.А. Бугаев, В.В. Гудялис, Б.П. Захарченя, Ф.А. Чудновский. Письма в ЖЭТФ **34**, 8, 452 (1981).
- [2] А.Л. Семенов. ФТТ **40**, 11, 2113 (1998).
- [3] А.А. Бугаев, Б.П. Захарченя, Ф.А. Чудновский. Фазовый переход металл–полупроводник и его применение. Наука, Л. (1979).

- [4] A. Cavalleri, Cs. Toth, C.W. Siders, J.A. Squier, F. Raksi, P. Forget, J.C. Kieffer. Phys. Rev. Lett. **87**, 23, 237 401 (2001).
- [5] A. Cavalleri, Th. Dekorsy, H.H. Chong, J.C. Kieffer, R.W. Schoenlein. <http://www.arxiv.org/cond-mat/0403214>; Phys. Rev. B **70**, 12, R 161 102 (2004).
- [6] Л.Н. Булаевский. УФН **115**, 2, 263 (1975).
- [7] А.Л. Семенов. ЖЭТФ **111**, 4, 1398 (1997).
- [8] В.И. Емельянов, Д.В. Бабак. ФТТ **41**, 8, 1462 (1999).
- [9] А.Л. Семенов. ЖЭТФ **117**, 6, 1175 (2000).
- [10] Ч. Киттель. Введение в физику твердого тела. Наука, М. (1978). С. 236.
- [11] V.I. Emel'yanov, D.V. Babak. Laser Phys. **7**, 2, 514 (1997).