

Fe/Si 薄膜中相干声学声子的光激发研究*

张郑兵¹⁾ 马小柏²⁾ 金钻明¹⁾ 马国宏^{1)†} 杨金波²⁾

1) (上海大学理学院物理系, 上海 200444)

2) (北京大学人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

(2011 年 8 月 22 日收到; 2011 年 9 月 28 日收到修改稿)

本文通过抽运 - 探测技术, 利用飞秒激光脉冲激发并探测了 Fe/Si 薄膜中的高频相干声学声子. 通过经典的阻尼谐振函数, 对声学声子的动力学行为进行了拟合. 实验及拟合结果表明, 该声学声子的共振频率约为 0.25 THz, 其退相时间约为 12 ps, 且都与激发光的波长和能量密度无关. 声学声子的振幅随着激发光能量密度的增加而线性地增强. 临界参数 $12\tau_{\text{ph}}/T$ 约为 0.6, 表明相干声学声子的驱动力主要来源于电子热应力的贡献. 最后, 结合薄膜的厚度和质量密度, 可以得到室温下垂直于该 Fe/Si 薄膜表面 (out of plane) 的弹性常数 C_{\perp} 约为 283 GPa.

关键词: 相干声学声子, 飞秒抽运 - 探测技术, Fe/Si 薄膜, 弹性常数

PACS: 74.25.Kc, 78.47.J-, 68.35.bd, 74.25.Ld

1 引言

声子的概念是在研究固体中晶格振动时首先引入的, 是一种典型的集体运动的元激发^[1]. 声子的研究是凝聚态物理的重要组成部分, 尤其对于材料的热传导性和电传导性等方面起着重要作用. 随着超短脉冲技术, 特别是飞秒激光技术的飞速发展, 利用超短脉冲激光可以有效地在半导体、金属薄膜及纳米颗粒中产生相干声学声子, 且频率已经达到 THz 量级^[2-7].

Tomsen 等利用皮秒激光抽运 - 探测技术, 首次在半导体及金属薄膜中研究了声学脉冲的产生, 并且探测到了声学回波^[8,9]. 在随后的 30 年间, 抽运 - 探测技术广泛地应用于各类材料中相干声子的激发及探测. Ogi 等人利用 Pt, Fe, FePt 等金属薄膜中产生的相干声学声子, 系统研究了金属薄膜的弹性常数^[10,11]. 半导体超晶格的布里渊中心声学支上的直接光学激发可以产生相干声学声子^[12], 但相干声学声子最为普遍的产生机理源于金属薄膜或纳米颗粒的超快热化. 由这一机理产生的声学声子往往以驻波的形式存在, 且声子的振动周期与薄膜的厚度或颗粒的直径成正比例关系^[13]. 然而如

何量化以及直接测量电子和晶格的热应力所产生的相干声学声子依然亟需进一步的研究.

本文运用飞秒激光抽运 - 探测技术, 产生并探测了 Fe/Si 薄膜中的相干声学声子. 对探测光瞬态反射率改变量 $\Delta R/R$ 振荡部分的快速傅里叶变换, 可以得到该声学声子的共振频率约为 0.25 THz. 运用经典的阻尼谐振函数, 量化了声学声子的频率、振幅和退相时间, 并系统研究了它们随抽运脉冲能量密度的依赖关系. 根据临界参数, 我们认为该相干声学声子的驱动力主要来源于电子热应力的贡献. 最后, 通过声学声子的共振频率、薄膜厚度和质量密度, 得到了垂直于该薄膜表面 (out of plane) 的弹性常数 C_{\perp} 约为 283 GPa.

2 实验描述

实验中的 Fe/Si 薄膜样品由脉冲激光沉积法制备得到. 采用的是相干 (Coherent) 公司的 KrF 准分子激光器 (Compex Pro 205), 其脉宽为 20 ns, 激光波长为 248 nm. 靶材选用高纯 Fe(99.999%), 基片选用单晶 Si 片. 脉冲激光镀膜腔室的本底真空

* 国家自然科学基金 (批准号: 11174195, 50701003), 上海市科学技术委员会基础研究计划 (批准号: 09530501100), 上海市重点学科建设工程 (批准号: S30105) 和国家重点基础研究发展计划 (973 计划)(批准号: 2010CB833104) 资助的课题.

† E-mail: ghma@staff.shu.edu.cn

度高于 8×10^{-8} Torr ($1 \text{ Torr} = 1.33332 \times 10^2 \text{ Pa}$), 充入流动高纯 Ar 气 (纯度 99.999%), 待气压稳定在 7 mTorr 后开始沉积. 样品和靶材之间的距离为 4 cm, 沉积时的基片温度为 25°C 激光脉冲频率为 10 Hz, 激光能量为 680 mJ. 为防止氧化, 在 Fe 膜表面沉积非常薄的一层 Au 膜. 实验中, 靶材和基片匀速转动, 共沉积 12000 个脉冲. 利用台阶仪测得该 Fe/Si 薄膜的厚度约为 $17 \pm 3 \text{ nm}$.

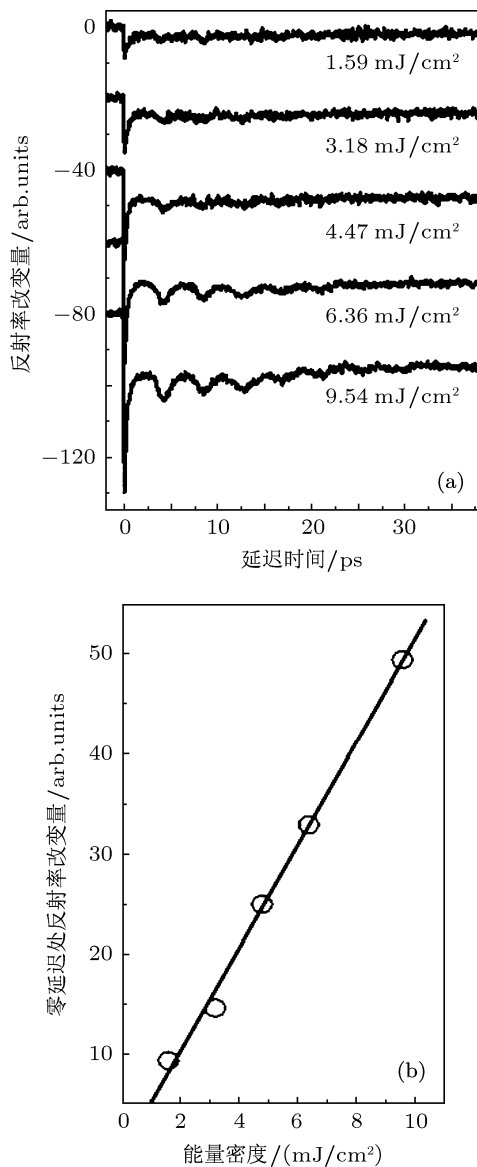


图 1 探测光反射率改变量随延迟时间和能量密度的变化 (a) 不同能量密度的抽运光激发下, Fe/Si 薄膜的探测光反射率改变量; (b) 零延迟时间处的探测光反射率改变量随抽运光能量密度的变化关系

抽运 - 探测实验中所使用的激光器为光谱物理公司的钛宝石激光器 (Spitfire Pro), 其输出脉冲的宽度约为 120 fs, 波长为 800 nm, 重复频率为 1 kHz. 利用分束器 BS (beam-splitter) 将输出的激光分成较

强的抽运光和较弱的探测光, 透射的强激光脉冲作为抽运光. 反射的探测光通过一个由计算机控制的精密光学延迟线改变与抽运光的时间延迟, 通过透镜 (焦距为 50 cm) 和抽运光聚焦到样品的同一点上. 样品位置处, 抽运光光斑的直径约为 $400 \mu\text{m}$, 探测光光斑的直径略小于抽运光光斑的直径, 且必须完全包含在抽运光光斑内. 光学延迟线的空间分辨的位移精度为 $1.25 \mu\text{m}$, 相应于时间延迟精度约为 8.3 fs. 经样品反射的探测光, 由硅光电二极管接收并将光信号线性地转换为电信号. 实验中结合使用锁相放大器 (lock-in) 和斩波器 (调制频率为 450 Hz) 来提高实验数据的信噪比 [14,15]. 所有实验均在室温下进行.

3 实验结果与讨论

图 1(a) 为不同能量密度的抽运光激发下, Fe/Si 薄膜的探测光瞬时反射率改变量 ($\Delta R/R$). 抽运光和探测光的光子能量均为 1.55 eV, 抽运光的能量密度从 $1.59 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ 增加至 $9.54 \text{ mJ}/\text{cm}^2$, 依次标记在实验数据旁. 如图所示, $\Delta R/R$ 由两个部分构成: 1) 在零延迟时间处为一个阶梯型的反射率改变量降低, 紧接着表现为指数型衰减; 2) 在指数型衰减的背景上叠加有一个阻尼振荡成分.

第一个部分描述的是金属薄膜中热电子的激发和弛豫过程 [16]. 当抽运光激发样品, 热电子的产生将显著地改变材料的折射率, 从而导致 $\Delta R/R$ 锐减. 随后的指数弛豫过程, 通常被认为是电子 - 晶格的热化过程. 电子 - 电子的热化过程比电子 - 晶格的热化过程快得多, 几十飞秒内电子就升温至 T_e , 远远高于声子温度 T_l , 而电子 - 晶格的热化时间在 100 fs—1 ps 范围内. 图 1(b) 为零延迟时间处探测光的反射率改变量 $\Delta R/R_{t=0}$ 随抽运光能量密度的依赖关系, 可以看出, $\Delta R/R_{t=0}$ 随着激发光能量密度的增加呈线性地增加, 说明电子的热化程度与抽运光的能量密度成正比.

Fe/Si 薄膜在吸收飞秒激光脉冲后, 由于薄膜的超快热化, 使得晶格扩张形成一个新的平衡位置, 且处于高度的形变状态. 从而导致在平衡位置中心产生一个以声波形式发射的相干晶格振荡, 形成 $\Delta R/R$ 中的第二个部分. 由于激发光光斑的直径 ($\sim 400 \mu\text{m}$) 远远大于薄膜的厚度, 因此晶格的运动可以看作是沿垂直于薄膜表面的一维运动. 即在薄膜中产生了垂直于薄膜表面的

一维纵向驻波, 这一声学波可以形象地理解为一种金属表面的呼吸模式. 选取抽运光能量密度为 9.54 mJ/cm^2 时 $\Delta R/R$ 的振荡部分进行快速傅里叶变换, 可以得到这一声学声子的共振频率 f 约为 0.25 THz , 如图 2 所示. 飞秒激光所激发的相干声学声子的频率根据金属薄膜的不同而不同. Nakamura 等在厚度为 24.1 nm 的 Cu/Si 薄膜上探测到振动频率为 0.235 THz 的相干声学声子 [17], Park 等在厚度为 $20 \pm 3 \text{ nm}$ 的 Al/NaCl 薄膜上探测到频率为 0.16 THz 的声学声子 [13]. 通过一维纵向驻波的振荡频率, 还可以估算出薄膜的厚度 $d = \frac{v}{2f} = 11.92 \text{ nm}$, 其中 v 为纯铁中的一维纵波传播速度 $v = 5960 \text{ m/s}$ [18]. 这与利用台阶仪测量得到的薄膜厚度基本符合.

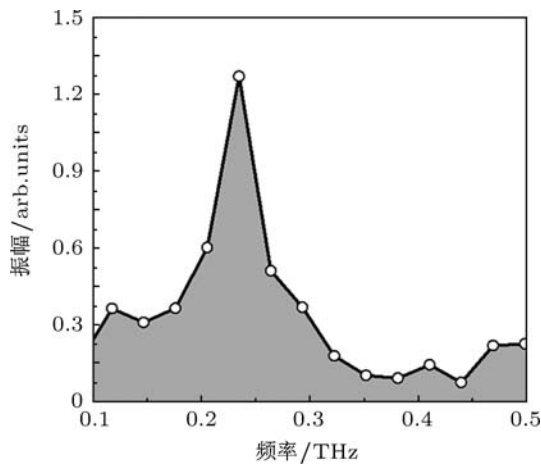


图 2 抽运光能量密度为 9.54 mJ/cm^2 时的 $\Delta R/R$ 振荡部分的快速傅里叶变换结果

为了获得相干声学声子的振幅、频率及退相时间等参数, 我们使用阻尼谐振函数对 $\Delta R/R$ 的振荡部分进行拟合 [19–21]

$$A e^{-t/\tau} \sin(\omega t + t_0), \quad (1)$$

式中 A 为相干声子的振幅, τ 为退相时间, ω 和 t_0 分别为相干声子的振荡频率和初始相位. 扣除指数型衰减的背景后, 对图 1(a) 中不同能量密度的飞秒光激发下 $\Delta R/R$ 的振荡部分进行拟合, 如图 3 所示. 图中的细线代表实验结果, 粗线代表拟合结果.

根据拟合结果, 图 4 记录了相干声学声子的振幅、频率和退相时间随激发光能量密度的依赖关系. 随着激发光能量密度的增加, 相干声子的振幅呈线性增长, 如图 4(a) 所示. 图 4(b) 表明声学声子的频率与激发光能量密度无关. 利用 BBO 晶体将抽运光倍频到 3.1 eV (即 400 nm), 此时所激发的声学声子频率依然约为 0.25 THz , 在图 4(b) 中以圆圈

标记, 可见声学声子的振荡频率与激发光的光子能量无关. 如图 4(c) 所示, 相干声学声子的退相时间约为 12 ps , 同样与激发光的能量密度无关, 说明该相干声学声子属非传播模式 [22].

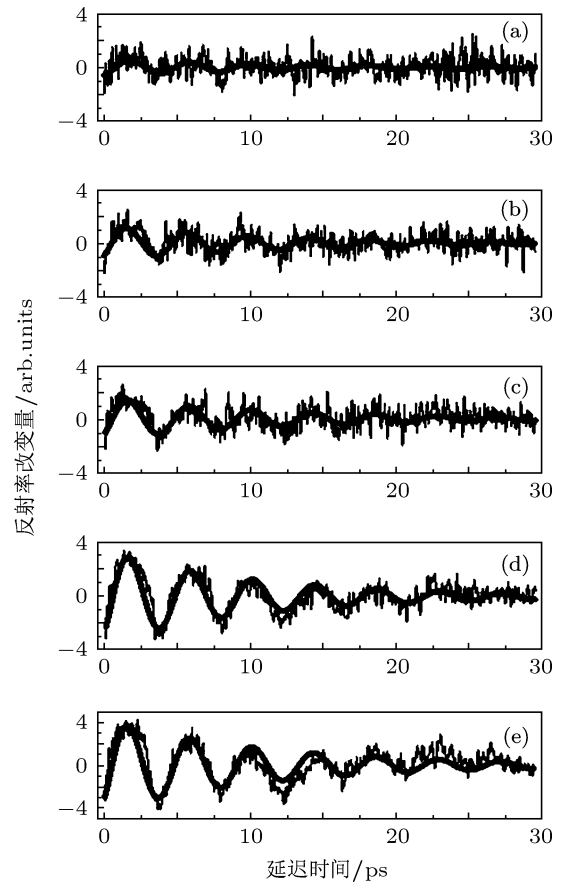


图 3 不同能量密度的飞秒光激发下探测光反射率改变量随延迟时间的变化及拟合结果 (a) 激发能量密度 1.59 mJ/cm^2 ; (b) 激发能量密度 3.18 mJ/cm^2 ; (c) 激发能量密度 4.47 mJ/cm^2 ; (d) 激发能量密度 6.36 mJ/cm^2 ; (e) 激发能量密度 9.54 mJ/cm^2

存在光吸收的固体材料中, 通常有两个独立的因素使晶格发生热膨胀: 一为晶格的非简谐热应力 (σ_l), 二为自由电子的热应力 (σ_e) [23]. 在超短激光脉冲激发下, 由这两个因素共同产生的热应力可以表示为 [24,25]

$$\sigma = \sigma_l + \sigma_e = -\gamma_l C_l \delta T_l - \gamma_e C_e \delta T_e, \quad (2)$$

其中 γ_l 和 γ_e 分别为晶格和电子的格林艾森常数, C_l 和 C_e 分别是晶格和电子的比热容. 热应力 σ 做为时间的函数, 仅由电子和晶格温度的演化过程所决定. 在短时间内, 电子的瞬态热化温度 ($T_e \geq 1200 \text{ K}$) 远高于晶格温度, 因此电子起着驱动晶格相干振荡的主导作用. 在非平衡条件下, 三倍的晶格热化时间 ($3\tau_{e-ph}$) 和晶格相干振荡周期的四分之一 ($T/4$) 的比值被认为是一个

临界参数^[13]. 仅当 $12\tau_{e-ph}/T \ll 1$ 时, 晶格的贡献主导着相干声子运动. 我们的实验中, 临界参数 $12\tau_{e-ph}/T \sim 0.6$, 说明电子的热应力在晶格相干振动过程中起主要作用.

弹性常数是描述固体性质的一个重要参数, 利用微拉伸实验^[26]、布里渊散射^[27]等方法可以测量平面内的弹性常数. 然而, 决定着纵波在薄膜厚度方向传播速度的垂直于薄膜表面 (out of plane) 的弹性常数 C_{\perp} 的测量长期困扰着人

们^[28]. 利用在薄膜中产生的纵向相干声学声子便可以方便地推算出垂直于薄膜表面的弹性常数^[11], $C_{\perp} = \rho(2df)^2 = 2.83 \times 10^{11}$ Pa, 其中 f 为相干声子的共振频率, ρ 为薄膜的质量密度 $7.86 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ ^[18], d 为利用相干声子频率推算出来的薄膜厚度约为 11.92 nm. 测得室温下, 垂直于该薄膜表面的弹性常数 C_{\perp} 约为 283 GPa, 与 Ogi 等的实验结果一致^[10,22]. 上述实验结果为薄膜器件工程提供了必要的参考.

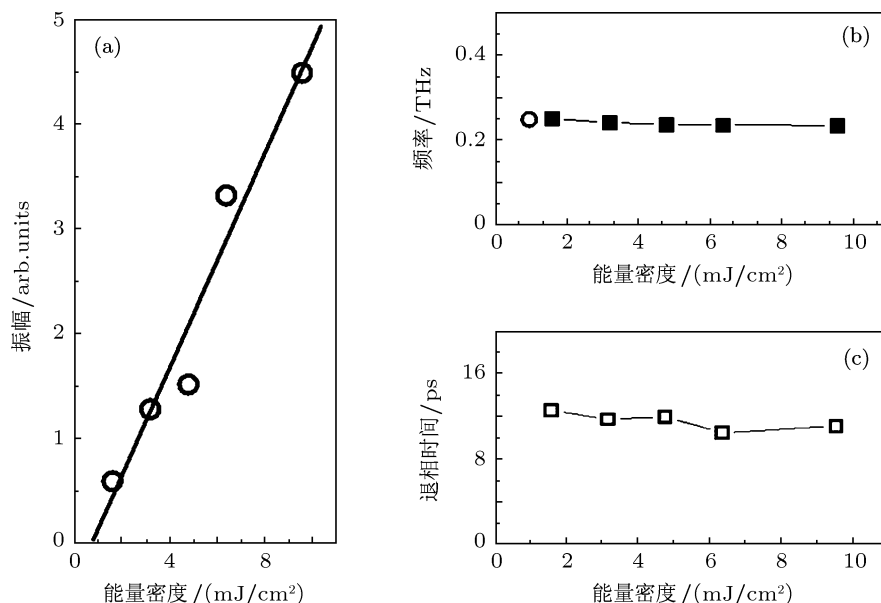


图 4 相干声学声子特征参数随激发能量密度的变化 (a) 相干声学声子振幅; (b) 相干声学声子频率; (c) 相干声学声子退相时间

4 结论

本文通过飞秒激光抽运 - 探测技术, 测量了 Fe/Si 薄膜中的探测光瞬时反射率改变量 $\Delta R/R$, 实验曲线中明显的振荡部分来源于飞秒激光所激发的相干声学声子. 运用经典的阻尼谐振函数对振荡部分进行拟合, 得到该声学声子的频率、振幅、退相时间与抽运光能量密度的依赖关系. 实验

结果表明, 声学声子的共振频率、退相时间均与激发光的能量密度无关, 而其振幅随着激发光能量密度的增加而线性地增强. 临界参数表明, 电子热应力在相干声学声子的产生中起主导作用. 最后, 根据声子振荡频率、薄膜厚度及质量密度, 我们估算出垂直于该 Fe/Si 薄膜表面的弹性常数 C_{\perp} 约为 283 GPa.

[1] Huang K, Han R Q 1988 *Solid Physics* (Beijing: Higher Education Press) p561 (in Chinese) [黄昆, 韩汝琦 1988 固体物理学 (北京: 高等教育出版社) 第 561 页]
 [2] Cho G C, Kütt W, Kurz H 1990 *Phys. Rev. Lett.* **65** 764
 [3] Wright O B 1994 *Phys. Rev. B* **49** 9985
 [4] Cheng L T, Nelson K A 1988 *Phys. Rev. B* **37** 3603
 [5] Nelson K A, Fayer M D 1980 *J. Chem. Phys.* **72** 5202
 [6] Perner M, Gresillon S, März J, Plessen G V, Feldmann J, Porsten-

dorfer J, Berg K J, Berg G 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 792
 [7] Yuan D Q, Zhou M, Yuan R, Dai Q X 2006 *Laser & Optoelectronics Progress* **43** 24 (in Chinese) [袁冬青, 周明, 袁润, 戴起勋 2006 激光与光电子进展 **43** 24]
 [8] Thomsen C, Strait J, Vardeny Z, Maris H J, Tauc J, Hauser J J 1984 *Phys. Rev. Lett.* **53** 989
 [9] Thomsen C, Grahn H T, Maris H J, Tauc J 1986 *Phys. Rev. B* **34** 4129

- [10] Ogi H, Fujii M, Nakamura N, Shagawa T, Hirao M 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 191906
- [11] Nakamura N, Uranishi A, Wakita M, Ogi H, Hirao M, Nishiyama M 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 101911
- [12] Yamamoto A, Mishina T, Masumoto Y, Nakayama M 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 740
- [13] Park H, Wang X, Nie S, Clinite R, Cao J 2005 *Phys. Rev. B* **72** 100301
- [14] Jin Z M, Ma H, Wang L H, Ma G H, Guo F Y, Chen J Z 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 201108
- [15] Jin Z M, Guo F Y, Ma H, Wang L H, Ma G H, Chen J Z 2011 *Acta Opt. Sin.* **60** 087803 (in Chinese) [金钻明, 郭飞云, 马红, 王立华, 马国宏, 陈建中 2011 物理学报 **60** 087803]
- [16] Hase M, Ishioka K, Demsar J, Ushida K, Kitajima M 2005 *Phys. Rev. B* **71** 184301
- [17] Nakamura N, Ogi H, Hirao M 2008 *Phys. Rev. B* **77** 245416
- [18] Ma D Y, Shen H 2004 *Acoustic Manual* (Beijing: Science Press) p168—173 (in Chinese) [马大猷, 沈山蒙 2004 声学手册 (北京: 科学出版社) 第 168—173 页]
- [19] Zeiger H J, Vidal J, Cheng T K, Ippen E P, Dresselhaus G, Dresselhaus M S 1992 *Phys. Rev. B* **45** 768
- [20] Kuznetsov A V, Stanton C J 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 3243
- [21] Jin Z M, Ma H, Li D, Wang L H, Ma G H, Chen J Z 2011 *Appl. Phys. B* **104** 59
- [22] Nakamura N, Uranishi A, Shagawa T, Ogi H, Hirao M, Nishiyama M 2008 *JSME Int J. Ser. A* **2** 1420
- [23] Barron T H K, Collins J G, White G K 1980 *Adv. Phys.* **29** 609
- [24] Tas G, Maris H J 1994 *Phys. Rev. B* **49** 15046
- [25] Lindenberg A M, Kang I, Johnson S L, Missalla T, Heimann P A, Chang Z, Larsson J, Bucksbaum P H, Kapteyn H C, Padmore H A, Lee R W, Wark J S, Falcone R W 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 111
- [26] Manghnani M H, Tkachev S N, Zinin P V, Glorieux C, Karvankova P, Veprek S 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 054308
- [27] Tanei H, Nakamura N, Ogi H, Hirao M, Ikeda R 2002 *Phys. Rev. Lett.* **100** 016804
- [28] Badawi K F, Villain P, Goudeau P, Renault P O 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 4705

Photoinduced coherent acoustic-phonons in Fe/Si film*

Zhang Zheng-Bing¹⁾ Ma Xiao-Bai²⁾ Jin Zuan-Ming¹⁾
Ma Guo-Hong^{1)†} Yang Jin-Bo²⁾

1) (Department of Physics, Shanghai University, Shanghai 200444, China)

2) (State Key Laboratory for Artificial Microstructure and Mesoscopic Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

(Received 22 August 2011; revised manuscript received 28 September 2011)

Abstract

High frequency coherent acoustic-phonons are excited in Fe/Si film by using femtosecond pump-probe technique. The dynamics of coherent acoustic-phonons can be fitted well to a classical damped harmonic function. The frequency and the dephasing time of the observed acoustic-phonons are 0.25 THz and 12 ps, respectively, which are independent of pumping photo-energy and fluence. Moreover, the amplitude of the coherent acoustic-phonons is linearly proportional to the fluence. The critical parameter ($12\tau_{e-ph}/T$) is calculated to be about 0.6, which indicates that the electron pressure might play a significant role in driving coherent acoustic phonons. The thickness and the mass density of the film are required to determine the out-of-plane elastic constant $C_{\perp} \sim 283$ GPa of the Fe/Si film.

Keywords: coherent acoustic phonon, femtosecond pump-probe technique, Fe/Si film, elastic constants

PACS: 74.25.Kc, 78.47.J-, 68.35.bd, 74.25.Ld

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11174195, 50701003), the Basic Research Program Science and Technology Committee of Shanghai, China (Grant No. 09530501100), the Foundation of Priority Academic Discipline of Shanghai, China (Grant No. S30105), and the National 973 Project (Grant No. 2010CB833104, MOST of China).

† E-mail: ghma@staff.shu.edu.cn