

激光作用下薄膜中的电子-声子散射速率

夏志林^{1)†} 范正修¹⁾ 邵建达¹⁾

1) 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

2) 中国科学院研究生院, 北京 100039)

(2005 年 6 月 1 日收到, 2006 年 1 月 8 日收到修改稿)

激光功率密度达到太瓦级时, 光学激光薄膜破坏中雪崩机制占主导地位. 研究雪崩破坏机理, 必然涉及到电子吸收激光能量的速率和电子损耗能量的速率, 这些都与电子和声子的散射有密切的联系. 所以, 电子受到的散射速率是研究雪崩机制的前提和基础. 本文分析了截断散射声子波矢对散射速率的影响, 得到散射速率与电子能量的依赖关系, 与其他理论及实验结果一致. 同时还对耦合参数进行了修正, 得到了依赖声子波矢的耦合参数, 修正结果表明在不改变散射速率与高能电子能量依赖关系的基础上, 散射速率整体降低了.

关键词: 激光, 薄膜, 电子, 声子

PACC: 7360, 6770, 3480Q, 4280X

1. 引言

激光与材料相互作用中, 电子-声子散射在电子吸收激光能量过程中发挥着极其重要的作用^[1], 同时对电子能量的损失以及电子空间上的扩散都有重要的贡献. 电子在运动时总要与晶格不断地碰撞, 晶格的运动用声子描述, 所以电子和晶格的碰撞, 就看成是电子和声子两种粒子之间的散射作用. 该散射使电子的运动方向发生改变, 如果方向改变的频率和激光电场方向改变的频率相当, 则电子能量会明显的增加, 电子可以高效的吸收激光能量. 早期的研究^[2-4]主要集中在电子和能量较大的光学声子的散射上. 但是^[5-7]单纯的依靠光学声子散射, 难以解释较高电场强度下电子能量的稳定性, 引入能量低的声学声子的散射可以很好地解决这个问题. 这些分析中虽然考虑了高电子能量下必然要涉及的 Umklapp 过程, 但只是对声子的频率进行了修正, 没有对声子的波矢做相应的处理, 得到了电子和声学声子的散射速率随电子能量增加而增加的结果. 不同理论^[8,9]和实验^[10]均表明, 在高速电子下, 散射速率随电子能量增加应该是减小的. 散射速率随电子能量增加而减小的数学处理, 在文献^[11]中得到了初步的解决, 但是还没有很合理的物理意义上的解

释. 近来, 散射速率和温度的关系得到了关注^[12-16]. 此外, 计算中用到的电子-声子耦合参数, 通常采用一些近似的常量代替, 这在很小的散射声子波矢空间中是合理的, 但是随电子能量增加, 参与散射的声子波矢空间越来越大, 耦合参数的色散就不可以忽视了.

本文首先介绍激光薄膜在高功率密度下损伤的雪崩机理和多光子离化机理. 并分析了截断(参与散射的)最大声子波矢对散射速率的影响. 然后用满足 Born 近似的汤川势分析了电子声子散射截面与声子波矢的关系, 得到了修正耦合参数下的散射速率. 最后, 以氧化硅为例作了计算比较.

2. 薄膜损伤机理

激光脉宽在几十皮秒到几十飞秒范围内时, 薄膜的破坏一般是由雪崩离化机理引起的. 研究雪崩离化机理, 必须知道电子密度的变化速率以及任意时刻电子在各能级的分布状况. 对于长波长激光, 其光子能量相对电子能量而言比较小, 电子吸收光子可以看成是一个能量连续变化的过程. 所以用经典的电磁理论处理长波长激光与材料作用的过程比较合适.

立足 Fokker-Planck 方程^[17], 计算电子雪崩离化的速率以及各能级上的电子密度分布

† E-mail: lionel626@163.com

$$\frac{\partial f(\epsilon, t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial \epsilon} \left(V(\epsilon) f(\epsilon, t) - D(\epsilon) \frac{\partial f(\epsilon, t)}{\partial \epsilon} \right) = S(\epsilon, t), \quad (1)$$

其中, $V(\epsilon) = R_f(\epsilon, t) - E_p \gamma(\epsilon) = \frac{\alpha(\epsilon) E^2(t)}{3} - E_p \gamma(\epsilon)$, 是单个电子吸收净能量的速率, 第 1 项是电子吸收激光能量的速率, 第 2 项是电子损失能量给晶格的速率, E, E_p 分别是激光电场强度和电子发射的声子的平均能量. $D(\epsilon) = \frac{2\alpha(\epsilon) E^2 \epsilon}{3}$, 是电子能量扩散系数. ϵ 是电子能量, $f(\epsilon, t)$ 是能量在 $(\epsilon, \epsilon + d\epsilon)$ 内 t 时刻的电子数量密度. $\sigma(\epsilon) = \frac{e^2 \tau_m}{m^* (1 + \omega^2 \tau_m^2)}$ 为单个电子的传导率. $\gamma(\epsilon)$ 是电子能转按 E_p 移到晶格的速率. $1/\tau_m(\epsilon)$ 为电子声子的动量散射速率. 最后一项 $S(\epsilon, t) = R_{\text{imp}}(\epsilon, t) + R_{\text{pi}}(\epsilon, t)$, 包括雪崩离化项和多光子离化项.

假设参与碰撞的高能导带电子的超过材料带隙宽度的能量部分, 平均分布在两个结果的导带电子上, 则雪崩离化的速率为

$$R_{\text{imp}}(\epsilon, t) = -v_i(\epsilon) f(\epsilon) + 4v_i(2\epsilon + u_i) f(2\epsilon + u_i),$$

式中 $v_i(\epsilon) = p_{ii} \left(\frac{\epsilon}{E_g} - 1 \right)^2$ 为碰撞离化产生电子的速率因子, 前因子 $p_{ii} \approx 1.5 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$. 雪崩机制产生电子的总速率为对所有能级的积分: $\frac{\partial n}{\partial t} = \int v_i(\epsilon) f(\epsilon) d\epsilon$.

光电离的发生机制与激光强度有关. 在很高强度的激光作用下, 带隙形成的势阱被畸化, 光诱导隧道效应可能发生. Keldysh 采用参数 $\gamma = \frac{\omega \sqrt{m^* E_g}}{eE}$

来界定多光子吸收和隧道效应^[18]. 其中, m^* 是导带有效电子质量, ω 是激光频率, e 是基本电荷, E_g 是薄膜材料的能带带隙, $E = \sqrt{4\pi I/c\eta}$ 是激光电场强度, c, η 分别是真空中的光速和薄膜材料的折射率, $I = J(\pi w_0^2 \cdot t_p)$ 是激光功率密度, J 是激光脉冲的总能量, w_0 是激光束腰半径, t_p 是激光脉冲宽度.

3. 电子-声子散射

在 (1) 式的求解中关键是确定电子和声子的散射率 (或散射弛豫时间), 它关系到电子吸收激光能量的速率以及电子向晶格传输能量的速率. 所以这类散射速率可以影响雪崩速率. 电子和声子的作用可以简单地分为两类, 一是电子和极化声子作用 (极

化声子指纵光学支声子 (LO). 一是电子和非极化声子作用, 非极化声子指声学声子 (LA, TA) 和横光学声子 (TO).

3.1. 极化电子-声子作用

单位频率空间中 LO 声子的波矢空间比较大, 声子频谱比较窄, 通常忽略声子频率随波矢的变化. 电子和 LO 声子的一阶散射速率, 可以根据 Frohlich 给出的库仑作用势^[19, 20]得到

$$\frac{1}{\tau_p^\pm(k)} = \frac{m^* e^2 \omega_{\text{LO}}}{4\pi \eta^2 k} \cdot \left(\frac{1}{\zeta_>} - \frac{1}{\zeta_<} \right) \cdot (n_{\text{LO}} + 0.5 \pm 0.5) \cdot \ln(q_{\text{max}}/q_{\text{min}}) \quad (2)$$

其中, ω_{LO} 是 LO 声子频率, η 是普朗克常数, $\zeta_<, \zeta_>$ 分别是频率比 LO 声子频率大和小的频率处的介电常数, n_{LO} 是对应温度下 LO 声子的玻色数, k 是电子波矢, $q_{\text{max}}, q_{\text{min}}$ 分别是声子的最大和最小波矢, 由散射过程中的动量和能量守恒可以得到, 当电子波矢很小的时候有

$$\begin{aligned} q_{\text{max}} &= 2k\mu 2m^* v_s/\eta, \\ q_{\text{min}} &= 2m^* v_s/\eta, \end{aligned} \quad (3)$$

+ , - 号分别对应声子的吸收与发射, 发射声子时电子能量最小值必须大于 $2m^* v_s/\eta$, v_s 是材料中的声速.

可见, 散射速率和 $\ln(\epsilon^{1/2}) \epsilon^{1/2}$ 成正比. 当电子能量达到一半布里渊边界的能量附近时, Umklapp 过程 (简称 U 过程) 有可能会发生. 此时, 需要对声子波矢最大值做出修正, 通常是直接将声子最大波矢截断成一定值. 对简单格子的晶体, 当 $\epsilon > \epsilon_{\text{BZ}}/2$ 时, $q_{\text{max}} = k_{\text{BZ}}$, 对复式格子最大波矢的确定需要视具体格子而定.

3.2. 非极化电子-声子作用

单位频率空间中声学声子波矢空间小, 声子频谱比较宽, 声子频率随波矢的色散不可以忽视. 电子和声学声子散射的速率由下面的表达式^[20]确定:

$$\frac{1}{\tau_{ac}^\pm(k)} = \frac{3m^* C^2}{4\pi \rho \eta^2 k} \int_{q_{\text{min}}}^{q_{\text{max}}} \frac{q^3}{\omega(q)} \{0.5 \pm 0.5 + n_q\} dq, \quad (4)$$

其中, 最大波矢的确定和 (2) 式中一样, 在大电子能量时必须考虑 U 过程. n_q 是声子在对应温度下的玻色数, ρ 薄膜材料的密度, $\omega(q)$ 是声子频率, 在波矢没有越过第一布里渊边界时, 它随声子波矢的变

化关系为 $\omega(q) = \omega_{\max} \left| \sin\left(\frac{qa}{2}\right) \right|$, $a = \frac{\pi}{k_{\text{BZ}}}$ 是材料的晶格常数, $\omega_{\max} = \eta \cdot v_s \cdot k_{\text{BZ}}$. 当声子波矢越过第一布里渊边界时, 声子频率直接近似为 ω_{\max} . 该频率对应晶体中只有重原子振动^[21], 且相临重原子振动方向相反的情形, 是声频波的短波极限. 相应的(4)式中的密度项用重原子密度代替. 由(4)式可以看出在电子能量比较小的时候, 散射速率和 $\epsilon^{3/2}$ 成比例增加, 如果考虑声子频率的色散, 散射速率在极小电子能量时近似随 ϵ 成比例增加. 而当电子能量较高的时候, 有效散射速率经过最大声子波矢的截断处理后随 $\epsilon^{-1/2}$ 减小.

3.3. 耦合参数修正

(4)式中的 $C \cdot q$ 可以理解为电子-声子的耦合参数, 在文献[5—7, 11, 20]中普遍将其当作常量处理. 而实际上耦合参数只有在一定的声子波矢范围内才可以视为常量. 声子的波矢跨度是很大的, 尤其是一些复式格子, 其最大波矢可以超出第一布里渊很多, 所以将 $C \cdot q$ 做常量处理的方法不是很妥当. 由于 $C \cdot q$ 和电子-声子散射截面有关, 下面基于电子-原子的作用势来确定电子-声子散射截面. 由于汤川势可以满足 Born 近似条件, 所以库仑作用势用汤川势表示^[22, 23]: $V(r) = g \frac{\exp(-ar)}{r}$, g 是作用强度参数, r 是电子和散射原子的距离, a 是作用势参数. 对汤川势 Born 近似的适用条件是: $\frac{2m^*}{\eta^2} \left| \int_0^\infty rV(r)dr \right| = \frac{2m^*g}{\eta^2 a} \ll 1$, 当 a 足够大的时候, 该近似条件成立. 汤川势的散射截面为: $\sigma(\theta) = \frac{4m^{*2}g^2}{\eta^4} \frac{1}{(\alpha^2 + q^2)^2}$, ηq 是电子散射时的动量转移,

这里 q 即参与散射的声子波矢, 散射截面随声子波矢增加.

耦合参数和散射截面满足这样的关系^[22, 24]:

$$|C \cdot q|^2 = \frac{\pi \eta^4 N^2 q^2}{m^{*2}} \mathcal{A}(\theta) = 4\pi N^2 g^2 \cdot q^2 (\alpha^2 + q^2)^2, \quad (5)$$

N 是材料的原子密度, g 和 α 可以通过不同电子能量下已知的耦合常量来拟合. 对确定的材料(5)式的分子部分是确定的, 可以用一个常量 C_1^2 代替, 即

$$C = 2\sqrt{\pi} N \cdot g (\alpha^2 + q^2) = C_1 (\alpha^2 + q^2), \quad (6)$$

由于 q 值是有上限的, 所以当电子波矢很大的时候, 散射以小角度散射为主, 耦合参数随波矢增加而减小, 随原子数密度增加而增加. 这里的 α 具有波矢的单位, 且其值一般在第一布里渊边界附近, 对应屏蔽距离的倒数, 也许该值才是最佳的 q_{\max} 截断值. 下面以氧化硅为例, 计算高能电子散射中对 q_{\max} 限制和不限制的散射速率, 电子吸收和损耗能量的速率, 以及耦合参数修改前后相应的变化.

4. 计算示例

以氧化硅材料为例, 计算激光作用下薄膜内电子-声子散射的速率, 计算中用到的参数值在表 1 列出了. 根据这些参数, 比较计算了声子最大波矢截断与否对散射速率的影响, 以及对应的电子吸收和损耗能量的速率. 采用的激光参数为: 峰值功率密度 32PW/m^2 , 脉宽 100fs , 波长 1064nm . 激光能量空间和时间上都是高斯形分布的. 对氧化硅中的纵光学声子, 有两个模式作用非常强^[20], 能量分别为 0.063eV , 0.153eV , 计算中主要计算这两支的作用.

表 1 计算中用到的氧化硅参数

质量密度 $\rho / (\text{kg} \cdot \text{m}^{-3})$	2200	最大声子波矢 $q_{\max} / \text{nm}^{-1}$	23.5
原子数密度 N / m^{-3}	2.35×10^{28}	边界电子能量 $\epsilon_{\text{BZ}} / \text{eV}$	5.5
重原子质量 M / kg	46.83×10^{-27}	介电常数 $\zeta_0 / \zeta_s - \zeta_0 / \zeta_c$	0.063/0.143
耦合常量 C_1 / eV	6	LO 声子能量 $\epsilon_{\text{LO}} / \text{eV}$	0.063/0.153
作用势参数 a / nm^{-1}	14.3	电子有效质量 m^*	
材料带隙 E_g / eV	9		
		$0.5m_0, k < k_{\text{BZ}}/2$	
		$km_0/k_{\text{BZ}}, k_{\text{BZ}}/2 < k < k_{\text{BZ}}$	
		$m_0, k > k_{\text{BZ}}$	

4.1. 最大波矢截断处理

图 1 中曲线 1 是声子波矢没有截断且耦合参数没有修正时,电子与声学声子散射曲线,包括全部的 3 支声子波. 图 2 中曲线 1,2 分别是声子波矢没有截断且耦合参数没有修正时,电子与频率为 0.153eV 和 0.063eV 的 LO 声子散射曲线. 在没有对声子波矢截断的情况下,电子与声学声子的散射速率随电子能量按 $\epsilon^{3/2}$ 增加,电子与光学声子的散射速率随电子能量按 $\ln(\epsilon^{1/2})\epsilon^{1/2}$ 减小. 这个关系与其他理论以及实验结果不一致,在高能电子散射中,不对声子波矢做截断处理得到的结果不合理. 截断处理过的结果如图 1 中曲线 2 和图 2 中曲线 3,4 所示.

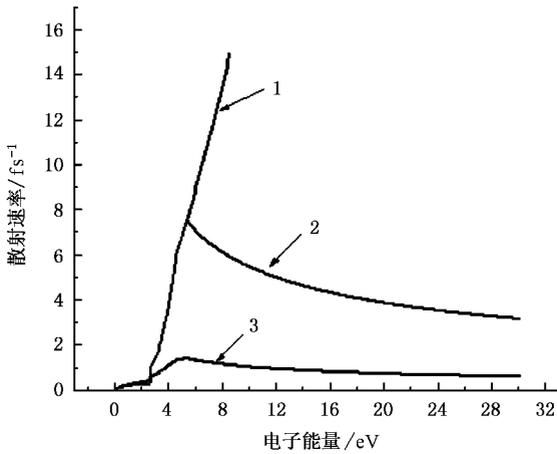


图 1

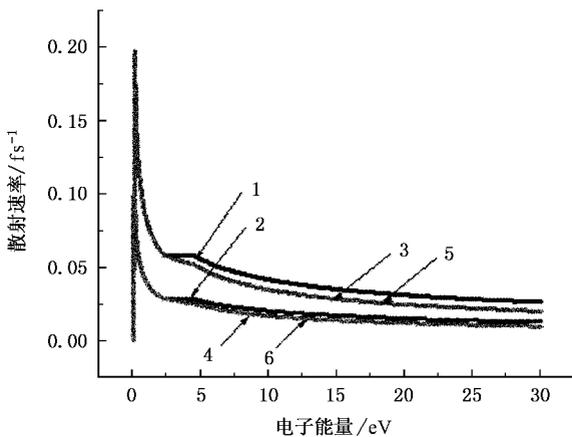


图 2

图 3 中曲线 1 是声子波矢没有截断且耦合参数没有修正时,电子吸收能量速率与电子能量关系的曲线. 图 4 中曲线 1 是声子波矢没有截断且耦合参

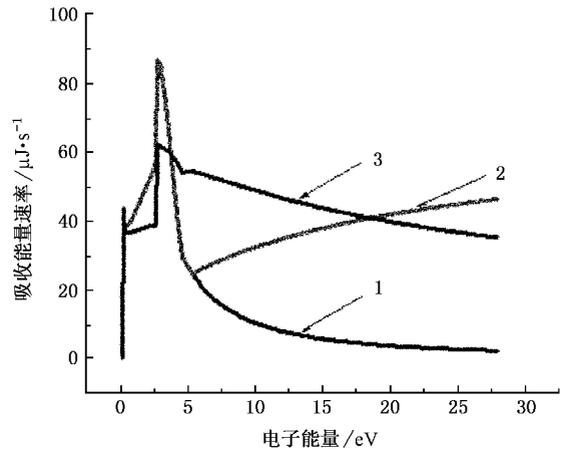


图 3

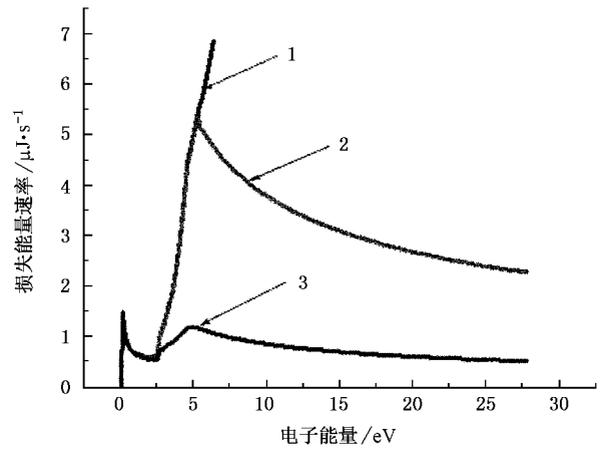


图 4

数没有修正时,电子损耗能量(电子能量向晶格传输能量)速率与电子能量关系的曲线. 电子向晶格传输能量的速率简单的随散射速率变化,散射碰撞越频繁,电子损失能量越快. 而电子吸收能量的速率不是简单的随散射速率变化,由于电子是在高频交流激光场中运动,只有当电子运动中受到的沿电场方向上的大角度碰撞弛豫时间和电场改变方向的周期相近时,电子才能得到有效的加热. 碰撞太慢和太快都不利于电子能量的积累. 这很容易理解:电子只有方向和电场方向一致的时候才得到有效的加速,而激光是周期性的改变电场方向的,电子只有和其同步的改变方向,才能高效率的吸收激光能量. 对 1064nm 波长的激光场,其频率 $\omega = 2.82 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$,最佳的散射弛豫时间应该满足 $\omega\tau = 1$,所以最佳散射速率为 $2.82 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$. 由图 3 可以看出,电子吸收曲线都有两个峰,其中低能峰是由 LO 光子散射带

来的,而高能峰是声学声子散射带来的。

由图1中曲线2和图2中曲线3,4可以看出声学声子与电子散射的曲线和光学声子与电子散射的曲线有相似性,在低能时碰撞速率迅速增加,在高端则会减小,但是两曲线的峰值位置不一样,两支LO光学声子的峰值位置在各自的能量处,声学声子的峰值位置在第一布里渊边界附近,具体峰位与最大波矢的截断值有关。最大波矢截断值不同只会改变该位置,对散射速率的整体值没有什么影响。形成这样的趋势,可以从物理意义找到合理的解释。在低能时,随电子能量增加,参与散射的声子波矢模式数增加,所以散射速率增加。到了高能端,由于U过程的发生,参与散射的声子模式数达到饱和,声子的总散射截面是一定的。所以随电子能量的增加,最大散射角则越来越小,散射效率越来越低,相对电子的波矢空间而言,声子波矢空间越来越小(相对而言),所以有效散射的速率越来越小。由图3曲线2和图4曲线2可以看出,高能端由于有效散射速率越来越小,越来越接近于最佳散射速率,所以电子的吸收又越来越大。而电子能量损失速率还是简单的随散射速率变化。

4.2. 耦合参数修正

上面的计算中所用的耦合参数都是采用的常量 $C = 6\text{eV}$,不随声子波矢变化。而实际上如前所述,

由于电子-晶格的耦合作用是和电子-声子散射的截面有关的,散射总截面随参与的声子模数增加而增加,所以用常量来近似不是很妥当。图1曲线3,图2曲线5,6,图3曲线3,图4曲线3的曲线支是根据(5)式修正耦合参数后得到的曲线。修正后的电子与声学声子散射速率整体降低。电子吸收能量速率的曲线也相应地发生变化,但是峰位基本上没有变化。电子损耗能量的速率也整体降低,峰值位置没有变化。

5. 结 论

(1)电子声子散射速率和电子能量的关系,受最大声子波矢值影响很大。对声子波矢不加以限制时,散射速率随电子能量增加。对声子波矢截断处理后散射速率先迅速上升,然后随电子能量的增加而减小。和其他理论及实验结果比较得出在发生U过程时对声子波矢截断处理是必须的。

(2)电子声子耦合参数随声子波矢的变化而变化。当参与散射的声子波矢空间很大时,耦合参数是不可以作为常量处理的,此时从散射截面出发对耦合参数进行修改将使计算结果更加合理。

(3)雪崩过程中导带电子和价带电子碰撞的速率与导带电子能量的关系,也是研究的重点,今后的工作将对其进行探讨。

- [1] Holstein T 1946 *Phys. Rev.* **70** 367
- [2] Thornber K K, Feynman Richard P 1970 *Phys. Rev.* **B 1** 4099
- [3] Lynch W T 1972 *J. Appl. Phys.* **43** 3274
- [4] Ferry D K 1975 *Appl. Phys. Lett.* **27** 689
- [5] Fitting H H, Friemann J U 1982 *Phys. Status Solid (a)* **69** 349
- [6] Spark M, Mills D L, Warren R, Holstein T, Maradudin A A, Sham L J, Loh E, Jr, King D F 1981 *Phys. Rev.* **B 24** 1755
- [7] Fischetti Massimo V 1984 *Phys. Rev. Lett.* **53** 3519
- [8] Zakharov S I, Fiveisky Y D 1988 *Solid State Commun* **66** 1251
- [9] Bradford J N, Woolf S 1991 *J. Appl. Phys.* **70** 290
- [10] Cartier E, McFeely F R 1991 *Phys. Rev.* **B 44** 10689
- [11] Arnold D, Cartier E, Dimaria D J 1994 *Phys. Rev.* **B 49** 10278
- [12] Paggel J J 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 186803-1
- [13] LaShell S, Jensen E, Balasubramanian T 2000 *Phys. Rev.* **B 61** 2371
- [14] Tang S J, Sprunger Ismail P T, Plummer E W 2003 *Phys. Rev.* **B 65** 235428
- [15] Hellsing B, Carlsson J, Wallden L, Lindgren S A 2000 *Phys. Rev.* **B 61** 2343
- [16] Hoffmann Gayone, Li Z, Hofmann Ph 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 127601
- [17] Stuart B C 1996 *Phys. Rev.* **B 53** 1749
- [18] Kaiser A 2000 *Phys. Rev.* **B 61** 11437
- [19] Frohlich R H 1937 *Soc. London Ser. A* **160** 230
- [20] Fischetti M V, DiMaria D J, Brorson S D, Theis T N, Kirtley J R 1985 *Phys. Rev.* **B 31** 8124
- [21] Lu D, Jang P, Xu Z Z 2003 *Solid Physics* (Shanghai: Shanghai Scientific, Technical Publishers) p63 (in Chinese) [陆栋、蒋平、徐至中 2003 固体物理(上海:上海科学技术出版社)第63页]
- [22] Zeng J Y 2000 *Quantum Mechanism* (Beijing: Science Press) p689 (in Chinese) [曾谨言 2000 量子力学(卷1)(北京:科学出版社)第689页]
- [23] Sun J F, Ma E J, Jiang Y M, Zhang S H 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1628 (in Chinese) [孙金锋、马二俊、江玉海、张胜海 1999 物理学报 **48** 1628]
- [24] Tian M F, Meng X J, Zhu X R, Jiang W H, Wang Z G 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 4673 (in Chinese) [田明锋、孟续军、朱希睿、姜昊、王志刚 2005 物理学报 **54** 4673]

Electrons-phonons collision velocity in films radiated by laser

Xia Zhi-Lin^{1,2)†} Fan Zheng-Xiu¹⁾ Shao Jian-Da¹⁾

¹⁾ *Shanghai Institution of Optics and Fine Mechanics, Shanghai 201800, China*

²⁾ *Graduate School, Chinese Academy of Science, Beijing 100080, China*

(Received 1 June 2005 ; revised manuscript received 8 January 2006)

Abstract

Avalanche ionization is a dominant damage mechanism of optical films if laser power density reaches to TW/cm^2 level. In order to study avalanche ionization mechanism, it is inevitable to deal with rates of electrons absorbing and losing energy. Both of these relate to the rate of collision between electrons and phonons. So it is important to study the collision of electrons and phonons. In this paper, we discuss the effect of truncating the maximum phonon vector on collision rate, and find the relation between scattering rate and electron kinetic energy. The conclusion is consistent with that obtained from other theories and experiments. At the same time, we also modify the coupling parameter, and obtain the connection of the coupling parameter with phonon vector. After modification, the curve shape of scatter rate versus electronic energy does not change, but the overall value decreases.

Keywords : laser, films, electrons, phonon

PACC : 7360, 6770, 3480Q, 4280X

† E-mail : lionel626@163.com