文章编号:1000-5773(2007)02-0183-05

飞秒激光辐照下硅薄膜的非傅里叶能量输运研究*

刘国栋,罗 福,王贵兵

(中国工程物理研究院流体物理研究所,四川绵阳 621900)

摘要:在双曲双步输运模型基础上建立数值模型,针对超短脉冲激光作用下硅薄膜的微观能量输运过程展开理论研究。针对电子、晶格超快温升响应过程的数值模拟结果表明,电子作为主要能量载子在几皮秒内主导了能量输运过程。电声子之间的能量耦合系数主要依赖于电子温度,而不是晶格温度。能量耦合过程由于非平衡电子的弹道式输运而呈现非局域性。热波的传播速度与电子能量传播速度有相同量级,而大于硅材料中的声子平均速度。模型预测与相关实验结果吻合。

关键词:飞秒激光;非傅里叶能量输运;数值模拟;硅薄膜

中图分类号:TN249 **文献标识码**:A

1 引 言

近年来,随着超短脉冲激光技术的发展,以及在微电子加工、材料薄膜结构加工和基础科学研究等方面的大量应用,超短脉冲激光和材料相互作用的能量转化和输运机制得到越来越多的重视。

在超短脉冲激光辐照过程中,激光能量激励时间与能量载子的特征弛豫时间相当,载流子输运以弹道方式为主,能量输运不再是建立在温度梯度基础上的扩散方式,宏观输运模型失去其成立的物理基础,而需要用更严格的、包含电声子相互作用的非傅里叶输运模型来描述[1-5]。

本研究是在双曲双步输运模型的基础上建立数值模型,并利用这一模型对超短脉冲激光作用下微尺度硅薄膜中的非傅里叶能量输运过程展开研究。

2 理论模型

微时间尺度(激光能量激励时间与能量载子的特征弛豫时间相当)下,能量载子的输运和不同载流子之间的相互作用可以用 Boltzmann 输运方程来描述

$$\frac{\partial f}{\partial t}+v_x\frac{\partial f}{\partial x}+\frac{F_x}{m}\frac{\partial f}{\partial v_x}=\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_s \tag{1}$$

由于所研究的硅薄膜厚度远大于材料中电、声子的特征波长,可以忽略量子效应。在研究的电-声子散射过程主导的时间领域(几皮秒)内,散射项中只需考虑载流子碰撞造成的能级粒子数变化。

载流子之间的碰撞使得电子通过热化过程趋于 Fermi-Dirac 分布,可以用有效电子温度 T_e 来描述,是电子能量的表征。这一过程中的声子系统通常认为处于热平衡,可以用声子温度 T_l 表示。

散射项可以分为两部分[4],表征电子和晶格之间的能量交换的非弹性散射和电子间的弹性散射。后者重建了电子的空间均匀性,可以用弛豫时间来定义。这也说明了弛豫时间近似仅对部分散射过程成立,而对非弹性散射过程是不成立的。

* **收稿日期**:2006-06-07;**修回日期**:2006-09-03

基金项目:国家863计划项目资助课题(802-4-4)

作者简介:刘国栋(1980—),男,硕士研究生,主要从事微尺度材料超快能量输运机制的研究. E-mail:guodong_k@yahoo.com.cn

从电子 Boltzmann 输运方程出发，结合电子和声子的能量守恒方程(包含电子和声子之间的能量耦合项)，可以得到双曲双步输运方程[4]

$$\begin{aligned} C_e(T_e)\frac{\partial T_e}{\partial t} &= -\frac{\partial Q}{\partial x} - G(T_e - T_l) + S \\ C_l(T_l)\frac{\partial T_l}{\partial t} &= G(T_e - T_l) \\ Q &= -\kappa\frac{\partial T_e}{\partial x} - \tau\frac{\partial Q}{\partial t} \\ C_e(T_e) &= \gamma T_e; \quad \kappa = \kappa_{eq} T_e / T_l \end{aligned} \tag{2}$$

式中：S 是激光源项，T_e 和 T_l 分别是等效电子温度和晶格温度，C_e 和 C_l 分别是电子和晶格体热容。Q 是电子能流，τ 是电-声子弛豫时间。κ 是有效热导率，κ_{eq} 是平衡态的热导率，表明超短脉冲作用下热导率同时依赖于电子和晶格温度。G 是与温度有关的电-声子耦合系数，决定了单位时间改变单位温度由电子转移至晶格的体能量。这里采用 Kaganov 等[1]给出的形式

$$\begin{aligned} G(T_e, T_l) &= G_0\left(\frac{T_e}{T_D}\right)\left[D_4(T_e, T_D) - \left(\frac{T_l}{T_e}\right)D_4(T_l, T_D)\right] \\ D_4(T_{e,l}, T_D) &= \frac{4}{(T_D/T_{e,l})^4}\int_0^{T_D/T_{e,l}} \frac{x^4}{e^x - 1}\mathrm{d}x \\ G_0 &= \frac{m^2U^2(k_B T_D)^5}{16\pi^3\hbar^7\rho s^4} \end{aligned} \tag{3}$$

式中：T_D 是 Debye 温度，m 是电子质量，ρ 是体密度，s 是固体声速，U 是一个与电子-晶格碰撞时间有关的项。根据 Pronko 等[6]的经验性的计算结果，硅的 G_0 取值为 3×10^{16} W/(m^3 · K)。如果忽略电子的弛豫过程，则模型蜕化为经验双温模型。如果进一步忽略电声子之间的能量耦合，即认为电声子体系始终处于平衡状态，则模型简化为宏观的 Fourier 热导模型。

3 计算结果与讨论

考虑超短脉冲激光辐照硅薄膜问题(图 1)，由于光束直径远大于硅的线性吸收深度，可以近似认为激光强度空间分布均匀。激光脉冲时间高斯分布，FWHM 脉宽为 t_p。在自由电子吸收和产生电子-空穴对的吸收机制下，通常长脉冲激光与单晶硅表面相互作用的吸收深度在 800 nm 处是 9.8 μm。然而在超短脉冲激光作用下，样品表面形成接近固体密度的等离子体薄吸收层，使对激光能量的吸收集中在材料表面 100 nm 厚度以内[6]。激光热源项可以表示为

$$S = (1-R)(I/\delta)\exp[-z/\delta - 2.77(t/t_p)^2] \tag{4}$$

式中：R 为样品表面反射率，δ 为辐射吸收深度。硅膜前后表面采用绝热型边界条件。

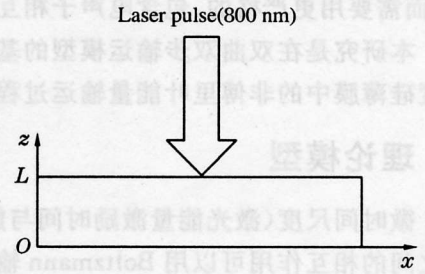


图 1 飞秒脉冲激光辐照单晶硅薄膜

Fig. 1 Schematic diagram for femtosecond laser heating of a c-Si film

利用(2)式～(4)式、结合边界条件进行数值求解，分别计算了在入射激光能量密度为 0.86 mJ/cm^2、脉宽 150 fs 和能量密度 120 mJ/cm^2、脉宽 80 fs 两种条件下，100 nm 厚度单晶硅薄膜内电子和晶格温度的响应过程。计算所用到的主要参数见表 1。

表 1 单晶硅物理参数[7-9]

Table 1 Physical properties of crystalline silicon used in the calculation[7-9]

Reflectivity R	Relaxation time τ/(ps)	Coupling coefficient G_0/[W/(m^3 · K)]	Lattice heat capacity C_l/[J/(m^3 · K)]	Thermal conductivity K_{eq}/[W/(m · K)]
0.327	0.5	3×10^{16}	a	b

Note: $a=(1.978+3.54\times10^{-4}T_l-3.68T_l^{-2})$ MJ/m^3; $b=(158\,500T_l^{-1.23})$ W/(m · K).

图 2 显示了入射激光能量密度为 0.86 mJ/cm^2、脉宽 150 fs 条件下硅薄膜表面的电子温度和电声子耦合系数随时间的变化。表面电子温度在激光脉冲开始作用的 0.5 ps 内达到最大值约 2 100 K，与 Seongtae 等[9]由飞秒激光辐照下电子辐射能谱实验推导出的电子温度响应结果吻合，而在这期间晶格温度只上升了约 10 K。由于相对较大的晶格体热容，在高能电子和晶格达到热平衡之前晶格温度将缓慢增长。数值模拟与实验结果的吻合说明在这一时间尺度内电子主导了能量输运，相对晶格远离平衡状态。从图中也可以看出电声子耦合系数 G 更强烈的依赖于电子温度，而不是晶格温度。

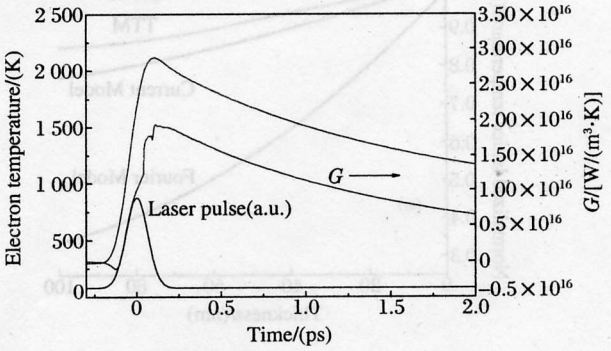


图 2　表面电子温度及耦合规律的数值模拟结果
(J=0.86 mJ/cm^2, t_p=150 fs)

Fig. 2　Evolution of surface electron temperature and the response of coupling coefficient
(J=0.86 mJ/cm^2, t_p=150 fs)

在能量密度为 120 mJ/cm^2、脉宽 80 fs 的激光辐照条件下，与 Pronko[6]的研究结果比较(图 3(a))发现二者预测了非常相近的物理过程。在 200 fs 内电子温度达到最高，超过 20 000 K，之后由于被激励电子的能量转移，电子温度下降。由于考虑了包含电子间相互作用和电声子相互作用的微观弛豫过程，模型预测了更快的电子温度下降过程，这正是微尺度下电子弹道式输运的特征。

图 3(b)对三种模型预测的硅膜后表面电子温度的变化过程进行了比较(为便于比较进行了归一化)。可以看出，数值模型与双温模型预测了相似的温度响应，而 Fourier 模型没有预测出正确的发展趋势。由于双温模型假设了热流与温度梯度的同时产生和消失，其预测的能量传播速度无穷大，与数值模型得到的有限能量传播速度完全不同。根据双曲型输运模型的热波速度公式$(\kappa/C_e\tau)^{1/2}$[10]，在 1 ps 内能量传播速度为 10^4 m/s 量级。

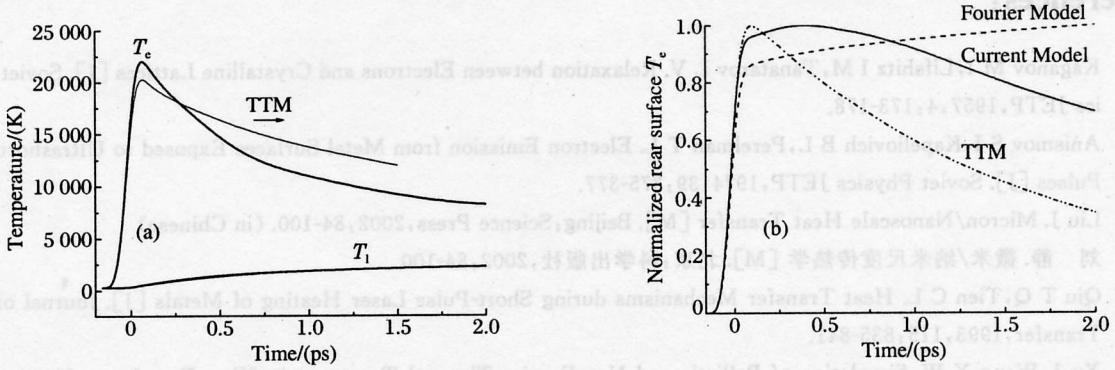


图 3　薄膜前后表面的电子、晶格温度发展过程(J=1.2 kJ/m^2, t_p=80 fs)

Fig. 3　Evolution of electron and lattice temperature at front and rear surface of the thin film
(J=1.2 kJ/m^2, t_p=80 fs)

图 4 模拟了 100 nm 厚度硅薄膜在 80 fs 脉冲激光辐照下的晶格温度响应。在激光脉冲结束时(图 4(a))，Fourier 模型预测了小得多的热影响区域，吸收的能量主要局限在辐射穿透深度以内，而数值模型和双温模型的预测显示了能量在材料晶格内比较均匀的传播。说明在超短脉冲激光辐照下，辐射能量并没有在穿透深度内就转化为晶格能量。在 0.1、0.5 和 1 ps 时的晶格温度分布如图 4(b)所示，其中实线代表数值模型，虚线代表双温模型。数值模型的曲线显示了热波的存在，通过热波峰值在给定时间间隔内传播的距离，计算其传播速度约为 26 km/s，大于硅材料中声子平均速度而与前面的电子能量传播速度同量级，说明在计算的时间范围内，声子间的热输运过程还没有主导能量输运。

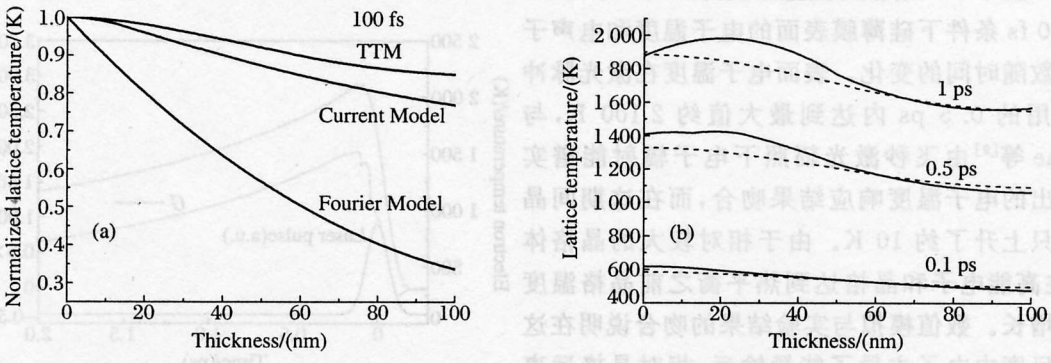


图 4 晶格温度在薄膜内的分布($J=1.2$ kJ/m^2, $t_p=80$ fs)

Fig. 4 Distribution of lattice temperature in thin film at different time delays($J=1.2$ kJ/m^2, $t_p=80$ fs)

4 结 论

针对硅薄膜在飞秒脉冲激光作用下的微观能量输运过程进行了数值模拟。发现在超短脉冲激光作用下,半导体硅薄膜中的载流子远离平衡态,能量输运主要是弹道式的,数值模拟结果与相关实验结果吻合。在几皮秒内电子作为主要能量载子而不是声子主导了能量输运过程,电声子之间的耦合系数依赖于电子温度而不是晶格温度。非平衡电子的弹道式输运使得电声子的耦合过程是非扩散局域性的。模型预测的热波传播速度与估算的电子能量传播速度同量级,而大于硅材料中声子的平均速度,进一步说明声子作为主要能量载子的热输运过程还没有开始。研究结果表明,建立在双曲双步输运方程基础上的数值模型能够很好地描述这一过程。

References:

[1] Kaganov M I, Lifshitz I M, Tanatarov L V. Relaxation between Electrons and Crystalline Lattices [J]. Soviet Physics JETP, 1957, 4: 173-178.

[2] Anismov S I, Kapeliovich B L, Perelman T L. Electron Emission from Metal Surfaces Exposed to Ultrashort Laser Pulses [J]. Soviet Physics JETP, 1974, 39: 375-377.

[3] Liu J. Micron/Nanoscale Heat Transfer [M]. Beijing: Science Press, 2002: 84-100. (in Chinese)
刘 静. 微米/纳米尺度传热学 [M]. 北京: 科学出版社, 2002: 84-100.

[4] Qiu T Q, Tien C L. Heat Transfer Mechanisms during Short-Pulse Laser Heating of Metals [J]. Journal of Heat Transfer, 1993, 115: 835-841.

[5] Xu J, Wang X W. Simulation of Ballistic and Non-Fourier Thermal Transport in Ultra-Fast Laser Heating [J]. Physica B, 2004, 351: 213-226.

[6] Pronko P P, VanRompay P A, Singh R K, et al. Laser Induced Avalanche Ionization and Electron-lattice Heating of Silicon with Intense near IR Femtosecond Pulses [A]//Singh K R. Advanced Laser Processing of Materials: Fundamentals and Applications [C]. Pittssburgh, Pa: Mat Res Soc, 1996: 45-51.

[7] van Driel H M. Kinetics of High-Density Plasmas Generated in Si by 1.06-and 0.53-μm Picosecond Laser Pulses [J]. Phys Rev B, 1987, 35(15): 8166-8176.

[8] Choi T Y, Grigoropoulos C P. Plasma and Ablation Dynamics in Ultrafast Laser Processing of Crystalline Silicon [J]. J Appl Phys, 2002, 92(9): 4918-4925.

[9] Jeong S, Boker J. Ultrafast Carrier Dynamics near the Si(100)2×1 Surface [J]. Phys Rev B, 1999, 59(7): 4943-4951.

[10] Joseph D D, Preziosi L. Heat Waves [J]. Rev Modern Phys, 1989, 61(1): 41-73.

Non-Fourier Energy Transport in Silicon Thin Films during Femtosecond Laser Heating

LIU Guo-Dong, LUO Fu, WANG Gui-Bing

(*Institute of Fluid Physics, CAEP, Mianyang* 621900, *China*)

Abstract: A numerical model which is based on the hyperbolic two-step model is developed to investigate the microscopic energy transport in silicon thin films during ultra-fast laser heating. It is observed that, electrons dominate energy transport within a few picoseconds. The coupling processes between electrons and phonons are non-local due to the ballistic transport of electrons, and the coupling coefficient is found to be much more strongly dependent on electron temperature than lattice temperature. The speed of heat wave propagation is the same magnitude as that of the electron energy transport. Predictions from the numerical model agree with available experimental data during ultra-fast laser heating.

Key words: femtosecond laser; non-Fourier transport; numerical simulation; silicon thin films