

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ

УДК 535.37

ЭЛЕКТРОННЫЕ ПЕРЕХОДЫ В ЗОНЕ ПРОВОДИМОСТИ ШИРОКОЗОННЫХ ДИЭЛЕКТРИКОВ ПОД ДЕЙСТВИЕМ МОЩНЫХ УЛЬТРАКОРОТКИХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ**А. Н. Бельский^{*}), А. Н. Васильев, Б. Н. Яценко***(кафедра оптики и спектроскопии)*

E-mail: boris_yatsenko@opts.phys.msu.ru

Работа посвящена исследованию нагрева электронов в зоне проводимости кристалла под действием мощных фемтосекундных лазерных импульсов. Показано, что механизм нагрева электронов в зоне проводимости диэлектрика, основанный на многократных электрон-фотон-фононных рассеяниях, может быть малоэффективным при возбуждении ряда диэлектриков (в частности CsI) ультракороткими лазерными импульсами с интенсивностью выше 10^{11} Вт/см². Для описания нагрева электронов такими импульсами до энергии в несколько десятков электрон-вольт, предложен механизм, учитывающий прямые межзветвевые переходы в зоне проводимости.

Изучение фундаментальных процессов, происходящих в широкозонных диэлектриках под действием мощного лазерного излучения, важно для понимания таких явлений, как радиационное образование дефектов и оптический пробой [1]. Большинство экспериментальных и теоретических работ, посвященных взаимодействию субпикосекундных лазерных импульсов с интенсивностью излучения в диапазоне от 10^8 до 10^{15} Вт/см² с кристаллами, выполнено для кварца [1–6], поскольку этот материал имеет большое прикладное значение и достаточно хорошо изучен. В них основным механизмом, приводящим к нагреву электронов в зоне проводимости, считается электрон-фотон-фононное рассеяние [2–4], описываемое в приближении эффективной массы. Необходимость использования такого трехчастичного механизма связана с тем, что в предположении параболического закона дисперсии, электрон не может поглотить фотон, не нарушая закон сохранения энергии или закон сохранения импульса. Этот запрет может быть снят, если в акте поглощения электроном фотона участвует фонон. Модель электрон-фотон-фононного нагрева электронов в зоне проводимости широкозонных диэлектриков была использована для объяснения ряда экспериментальных результатов [1, 3, 4].

Однако в последнее время получены экспериментальные спектры фотоэлектронов [5–7], которые не объясняются с помощью модели электрон-фотон-фононного нагрева электронов в зоне проводимости диэлектрика. Так, например, в работе [7] кристалл CsI облучался лазерными импульсами с длительностью 40 фс и энергией в диапазоне от 20 до 100 мкДж. Таким энергиям лазерного импульса соответствовали интенсивности в диапазоне от $6 \cdot 10^{11}$ Вт/см² до $3 \cdot 10^{12}$ Вт/см². Длина волны лазера составляла 800 нм (это соответствует энергии кванта 1.55 эВ). Рассмотрим случай возбуждения импульсами с энергией 100 мкДж. Получаемые в эксперименте фотоэлектронные спектры состоят из трех частей: достаточно резкая структура в низкоэнергетичной части спектра (диапазон 0–4 эВ), широкое плато (диапазон 4–25 эВ) и спадающий участок электронов высокой энергии (диапазон 25–30 эВ). Начальная низкоэнергетичная часть спектра объясняется на основе электрон-фотон-фононного механизма нагрева электронов в зоне проводимости [3, 4]. Однако наличие широкого плато и существование электронов с энергией свыше 25 эВ не может быть интерпретировано в рамках этой модели.

Действительно, характерное время электрон-фононного взаимодействия τ_{LO} (случай LO фоно-

^{*}) Centre Lasers Intenses et Applications, CELIA, Université de Bordeaux I et CNRS 33405 Talence, France.

нов) оценивается следующим образом [8]:

$$\frac{1}{\tau_{LO}(E)} = \frac{e^2 \Omega_{LO} \sqrt{2m^*}}{2\epsilon^* \hbar \sqrt{E}} \ln \left| \frac{\sqrt{E} + \sqrt{E - \hbar\Omega_{LO}}}{\sqrt{E} - \sqrt{E - \hbar\Omega_{LO}}} \right|,$$

$$\epsilon^* = \left(\frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{1}{\epsilon_0} \right)^{-1},$$

где E — энергия электрона; $\hbar\Omega_{LO}$ — энергия LO фонона; m^* — эффективная масса электрона; ϵ_0 и ϵ_∞ — статическая и оптическая диэлектрические проницаемости кристалла соответственно; ϵ^* — эффективная диэлектрическая проницаемость. Для кристалла CsI энергия LO фонона $\hbar\Omega_{LO} = 10.93$ мэВ, а эффективная диэлектрическая проницаемость $\epsilon^* = 6.033$ [9]. В качестве m^* бралась масса свободного электрона, поскольку нас интересует широкий диапазон энергий электрона, а приближение эффективной массы работает только при малых энергиях. График функции $\tau_{LO}(E)$ представлен на рис. 1.

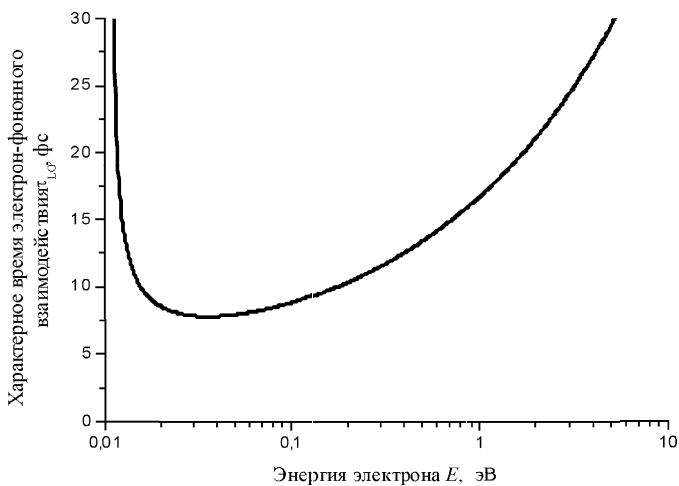


Рис. 1. Зависимость характерного времени электрон-фононного взаимодействия $\tau_{LO}(E)$ от энергии электронов E для кристалла CsI

Из графика на рис. 1 видно, что начиная с энергий близких энергии оптического фонона 10.93 мэВ, характерное время быстро падает с ростом энергии электрона. Минимальное характерное время электрон-фононного взаимодействия составляет около 8 фс и соответствует энергии электрона $E = 0.035$ эВ (что приблизительно в 3 раза больше самой энергии оптического фонона). При дальнейшем росте энергии электрона характерное время электрон-фононного взаимодействия растет почти корневом образом и для электронов с энергией в 1.8 эВ (на краю 1-й зоны Бриллюэна для CsI в соответствии с моделью эффективной массы) составляет около 20 фс.

Таким образом, за время импульса (40 фс) электрон максимально испытывает 2–3 электрон-фотон-фононных взаимодействия, т. е. механизм электрон-фотон-фононного нагрева не может служить объяснением высокоэнергетичной (> 10 эВ) части фотоэлектронного спектра.

Кроме того, существенным ограничением модели электрон-фотон-фононного нагрева [3, 4] является то, что использованное в них приближение эффективной массы корректно только для электронов с кинетической энергией, не превышающей нескольких эВ (что соответствует энергии электронов на краю первой зоны Бриллюэна). При больших энергиях электронов необходимо учитывать многоветвевую структуру закона дисперсии (см., напр., [10]). Мы предлагаем модель альтернативного механизма нагрева электронов, который так же, как электрон-фотон-фононный механизм, универсален для всех диэлектрических кристаллов.

Рассмотрим процесс перехода электрона с одной ветви дисперсионной кривой на другую ветвь в зоне проводимости кристалла под действием периодического электромагнитного поля в приближении почти свободных электронов. Согласно этой модели в нулевом приближении по взаимодействию электронов с полем кристалла, закон дисперсии представляется в виде набора параболических ветвей, минимумы которых соответствуют центру первой зоны Бриллюэна и всем остальным эквивалентным точкам в схеме расширенных зон Бриллюэна [10]:

$$\epsilon_i(\mathbf{p}) = \frac{(\mathbf{p} - \mathbf{p}_i)^2}{2m},$$

где ϵ_i — энергия электрона, находящегося на i -й дисперсионной кривой; \mathbf{p} — квазиимпульс электрона; m — масса электрона; $\mathbf{p}_i = \hbar(n_1 \mathbf{b}_1 + n_2 \mathbf{b}_2 + n_3 \mathbf{b}_3)$ — векторы обратной решетки, определяемые набором целых чисел $i = \{n_1, n_2, n_3\}$ и базисными векторами обратной решетки $\{\mathbf{b}_1, \mathbf{b}_2, \mathbf{b}_3\}$. Будем считать, что напряженность электрического поля и эффективный квазиимпульс электрона изменяются во времени по гармоническому закону:

$$\mathbf{F}(t) = \mathbf{F} \cos(\omega t); \quad \mathbf{p}(t) = \mathbf{p} + \frac{e\mathbf{F}}{\omega} \sin(\omega t),$$

где \mathbf{p} — квазиимпульс в отсутствие поля.

В этом случае вероятность (в единицу времени и в единице объема) перехода электрона с одной ветви (с индексом 1) на другую (с индексом 2) будет определяться следующей формулой [11]:

$$W = \frac{2\pi}{\hbar} \int \frac{d^3p}{(2\pi\hbar)^3} |L_{21}(\mathbf{p})|^2 \sum_n \delta(\bar{\epsilon}(\mathbf{p}; \mathbf{F}) - n\hbar\omega), \quad (1)$$

где $\bar{\epsilon}(\mathbf{p}; \mathbf{F}) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} \epsilon(\mathbf{p} + \frac{e\mathbf{F}}{\omega} \sin x) dx$ — разность энергий, усредненная по фазе поля; $\epsilon(\mathbf{p}) = \epsilon_2(\mathbf{p}) - \epsilon_1(\mathbf{p}) = -\frac{2\mathbf{p}(\mathbf{p}_2 - \mathbf{p}_1) + (p_1^2 - p_2^2)}{2m}$ — разность энергий электронов с одинаковым квазиимпульсом на 2-й и 1-й ветви. Функция $L_{21}(\mathbf{p})$ будет определяться

следующим образом:

$$L_{21}(\mathbf{p}) = \frac{1}{2\pi} \oint_C V_{21} \left(\mathbf{p} + \frac{e\mathbf{F}}{\omega} \mathbf{u} \right) \times \\ \times \exp \left\{ \frac{i}{\hbar\omega} \int_0^u \varepsilon \left(\mathbf{p} + \frac{e\mathbf{F}}{\omega} \mathbf{v} \right) \frac{dv}{(1-v^2)^{1/2}} \right\} du,$$

где контур C — контур интегрирования, охватывающий отрезок $(-1; 1)$; $V_{21}(\mathbf{p})$ — матричный элемент оптического перехода с 1-й ветви на 2-ю [11]. Для простоты здесь и далее будем считать, что он равен некоторой постоянной величине V_0 , умноженной на корень из интенсивности волны I ($I \sim F^2$), т. е. $V_{21}(\mathbf{p}) = V_0 \sqrt{I}$.

Рассмотрим следующий частный случай простой кубической решетки (что соответствует решетке CsI). Пусть $\mathbf{p}_1 = 0$; $\mathbf{p}_2 = \frac{2\pi\hbar}{a} \mathbf{i}_x$, где a — период решетки, а \mathbf{i}_x — единичный вектор, направленный вдоль оси x . Будем рассматривать переходы с 1-й ветви на 2-ю внутри 1-й зоны Бриллюэна ($p_x \in [-\frac{\pi\hbar}{a}; \frac{\pi\hbar}{a}]$). Интересно определить зависимость вероятности переходов в единицу времени от энергии электрона $W(\varepsilon)$. Эту величину можно вычислить следующим образом на основании формулы (1):

$$W(\varepsilon) = \frac{V(2\pi\hbar)^{-3}}{g(\varepsilon)} \int_{\Omega} d^3p \frac{2\pi}{\hbar} |L_{21}(n, \mathbf{F})|^2 \times \\ \times \sum_n \delta(\bar{\varepsilon}(\mathbf{p}) - n\hbar\omega) \delta\left(\varepsilon - \frac{p^2}{2m}\right). \quad (2)$$

В этой формуле $g(\varepsilon) = \frac{V}{(2\pi\hbar)^3} \int_{\Omega} d^3p \delta\left(\varepsilon - \frac{p^2}{2m}\right) = \frac{V}{4\pi^2\hbar^3} (2m)^{3/2} \sqrt{\varepsilon}$ — плотность состояний для случая свободных электронов (без учета вырождения по спину), Ω — область в пространстве квазиимпульса, соответствующая 1-й зоне Бриллюэна, V — объем кристалла, $|L_{21}(n, \mathbf{F})|^2 = \frac{V_0^2 I}{B_1^2} (B_1 J_{n-1}(B_1) - n J_n(B_1))^2$, где $B_1 = \frac{1}{\hbar\omega} \frac{e\mathbf{F}(\mathbf{p}_2 - \mathbf{p}_1)}{\omega m}$, а $J_n(x)$ — функции Бесселя.

Проводя вычисления зависимости вероятности переходов в единицу времени от энергии электронов по формуле (2), получаем, что:

$$W(\varepsilon) = \sum_n W_n(\varepsilon) = \\ = \frac{a}{\hbar^2} \sqrt{\frac{m}{8\varepsilon}} \sum_n \Theta(\varepsilon - \varepsilon_n) |L_{21}(n, F_x)|^2, \quad (3)$$

где $\Theta(z)$ — функция Хевисайда; $\varepsilon_n = \varepsilon_0 \left(1 - \frac{n}{\tilde{n}}\right)^2$, где $\tilde{n} = \frac{4\varepsilon_0}{\hbar\omega}$, а $\varepsilon_0 = \frac{1}{2m} \left(\frac{\pi\hbar}{a}\right)^2$; F_x — проекция вектора напряженности электрического поля на ось x ; в формуле (3) суммирование ведется по n от 1 до $[\tilde{n}]$. В случае кристалла CsI значение $\tilde{n} = 4.65$.

При рассмотрении переходов с нижнего энергетического уровня зоны проводимости на ближайший вышележащий необходимо учитывать также другие ветви (которым будут соответствовать $\mathbf{p}_2 = \pm \frac{2\pi\hbar}{a} \mathbf{i}_{x,y,z}$ для случая кубической решетки). Тогда получим следующее выражение для функции вероятности перехода в единицу времени:

$$W(\varepsilon) = \frac{a}{\hbar^2} \sqrt{\frac{m}{8\varepsilon}} \sum_n \Theta(\varepsilon - \varepsilon_n) \times \\ \times \left(2 |L_{21}(n, F_x)|^2 + 2 |L_{21}(n, F_y)|^2 + 2 |L_{21}(n, F_z)|^2 \right). \quad (4)$$

Таким образом, с ростом энергии электрона вероятность перехода 1–2 изменяется скачкообразно. Скачки будут происходить при энергиях ε_4 , ε_3 и т. д. В промежутках между скачками вероятность перехода падает с ростом энергии пропорционально $(\varepsilon)^{-1/2}$. Например, при интенсивности волны 10^{12} Вт/см² вероятность перехода в единицу времени составит приблизительно 0.4 фс⁻¹. Поскольку матричный элемент L_{21} содержит множитель \sqrt{I} , целесообразно проследить за поведением зависимости эффективного сечения n -фотонного перехода 1–2, которое определяется как $\sigma_n(I) = W_n(\varepsilon, I)/I$. На рис. 2 представлена эта зависимость в случае, когда поле направлено вдоль оси (111) кристалла. Значения эффективного сечения σ_n нормированы на величину 0.03 м²/Дж.

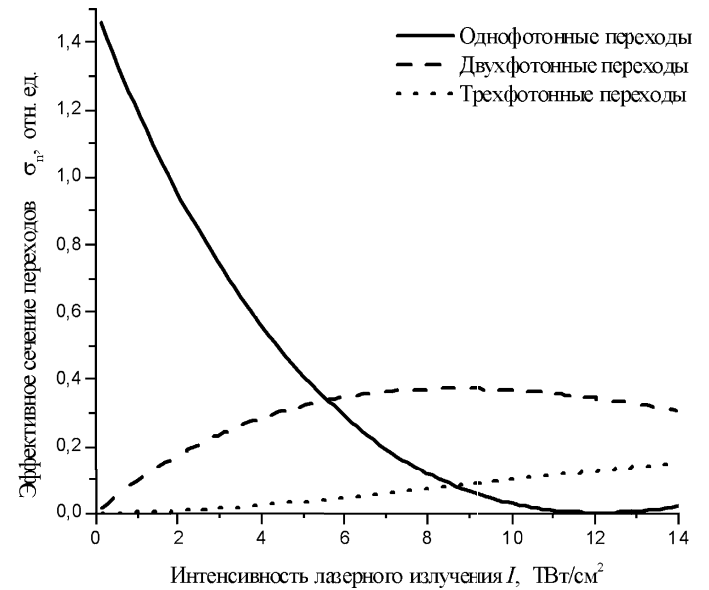


Рис. 2. Зависимость эффективного сечения n -фотонного перехода 1–2 от интенсивности лазерного излучения для энергии электронов $\varepsilon_1 < 1.26$ эВ $< \varepsilon_0$ (поле направлено вдоль оси (111) кристалла) для кристалла CsI

Таким образом, из формулы (4) и графиков видно, что переходы с ветви 1 на ветвь 2 возможны не только для фиксированных значений энергии электронов (когда $\varepsilon = \varepsilon_{1,2,3,4}$), но и для других значений энергии. При тех интенсивностях, которые были в экспериментах [7] (до 10^{13} Вт/см²), достаточно сильно увеличиваются вероятности двух

и трех фотонных переходов. Это приводит к тому, что благодаря переходам с 1-й ветви на 2-ю, далее со 2-й на третью и т. п. происходит довольно быстрый нагрев электронов (поскольку скорость прямых переходов существенно больше, чем переходов с участием фононов).

На основании модели прямых межветвевых переходов удастся качественно объяснить поведение спектра фотоэлектронов при больших энергиях. В самом простом случае можно представить структуру энергетических уровней зоны проводимости диэлектрика как набор эквидистантных уровней (начиная с нулевой энергии и выше), отстоящих друг от друга на величину энергии падающих фотонов $\hbar\omega$. При этом предполагается, что при взаимодействии фотона с электроном он либо приводит к увеличению энергии электрона на $\hbar\omega$, либо к уменьшению на $\hbar\omega$ (причем вероятности этих двух процессов одинаковы, при исследуемых интенсивностях можно пренебречь спонтанными переходами). Таким образом, электрон, ионизованный из валентной зоны в начале лазерного импульса, в течение этого импульса будет совершать диффузионное движение по энергии. Если при этом допустить возможность гибели электронов при нулевой энергии, то даже такой простой подход приведет к образованию как плато в спектре фотоэлектронов, так и отсечки на высоких энергиях.

Таким образом, можно выделить два основных механизма нагрева электронов в зоне проводимости диэлектрика при воздействии на него ультракоротких интенсивных лазерных импульсов. Это механизм электрон-фотон-фононного нагрева и механизм прямых межветвевых переходов. Нагрев электронов в зоне проводимости диэлектрика до нескольких электрон-вольт качественно описывается с помощью модели электрон-фотон-фононных рассеяний (особенно для систем с большими энергиями оптических фононов). При больших энергиях электронов для описания нагрева электронов в зоне проводимости диэлектрика необходимо дополнительно

привлекать механизм прямых межветвевых переходов. Такие энергии электронов в зоне проводимости достигаются уже при возбуждении диэлектриков фемтосекундными импульсами с интенсивностью $10^{11} - 10^{12}$ Вт/см². Механизм прямых межветвевых переходов приобретает особую важность для случая сверхкоротких фемтосекундных импульсов, когда длительность лазерного импульса приближается по порядку величины к характерному времени электрон-фононного взаимодействия и механизм электрон-фотон-фононного нагрева становится существенно менее эффективным по сравнению с механизмом межветвевых переходов.

Литература

1. *Stuart B.C., Feit M.D., Herman S. et al.* // Phys. Rev. 1996. **B53**. P. 1749.
2. *Kaiser A., Rethfeld B., Vicaneck M., Simon G.* // Phys. Rev. 2000. **B61**. P. 11437.
3. *Daguzan Ph., Guizard S., Krastev K. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1994. **77**, P. 2352.
4. *Daguzan Ph., Guizard S., Martin P. et al.* // J. Opt. Soc. Am. B. 1996. **13**. P. 138.
5. *Quere F., Guizard S., Martin Ph. et al.* // Phys. Rev. 2000. **B61**. P. 9883.
6. *Martin Ph., Merdji H., Guizard S. et al.* // Laser Physics. 2000. **10**, No. 1. P. 270.
7. *Belsky A., Vasil'ev A., Yatsenko B. et al.* // Abstracts, 6th workshop «Sources coherentes et incoherentes UV, VUV ET X applications et developpements recents», UVX-6, 11-14 Juin 2002, Ile d'Oleron, France, P. 64.
8. *Гантмахер В.Ф., Левинсон И.Б.* Рассеяние носителей тока в металлах и полупроводниках. М., 1984.
9. *Bass M., Van Stryland E.W., Williams D.R., Wolfe W.L.* Handbook of Optics. V. 1. N. Y., 1995.
10. *Vasil'ev A.N., Fang Y., Mikhailin V.V.* // Phys. Rev. 1999. **B60**. P. 5340.
11. *Келдыш Л.В.* // ЖЭТФ. 1964. **47**. С. 1945.

Поступила в редакцию
30.10.02