

International Conference on Solid State Devices and Materials, Isukuba, (1992), 449—451.

[11] S. K. Chun et al., *IEEE Electron Devices*, **39-9** (1992), 2153.

[12] A. Hiroki et al., *IEEE Electron Devices*, **35**

(1988), 1487.

[13] D. K. Nayak et al., *IEEE Electron Device Letters*, **EDL-12**(1991) 154.

[14] J. Yuan-Chen Sun et al., *IEEE Electron Devices*, **34**(1987), 19.

瞬态激光作用下的弛豫过程¹⁾

周本谦

(中国科学院金属研究所, 中国科学院国际材料物理中心, 沈阳 110015)

概述了国内外在非平衡统计方面有关的理论和方法。着重介绍了中国科学院金属研究所在固体非平衡性质方面研究工作的一些新近进展,其中包括激光脉冲激发下的非平衡声子动态过程,一维链中非线性声子交互作用形成的孤子状激发,无序固体低温下声子输运的量子理论,瞬态激光作用下温度和长度变化的不同步效应。最后讨论了这方面今后应进行的理论和实验工作。

由于高新技术的发展,加热过程大大加快。在超短脉冲激光作用下,固体中将引发一系列瞬态过程,除了输运过程而外,一些平衡性质也因此显示出非平衡的特征。通过各类微观粒子的碰撞和散射,能量和动量分布将逐渐趋于平衡,这就是固体中发生的一类弛豫过程。在处理这类过程的理论问题时,因为牵涉到大量微观粒子的运动和交互作用,人们往往采用非平衡统计的理论和方法。而从实验上研究有关现象时,高速信号转换和采样系统就成为必不可少的技术。中国科学院金属研究所从80年代开始研究固体的非平衡热物理性质,从理论和实验两方面同时入手,彼此互相参照和验证,得到一些令人感兴趣的结果,本文将对此作一简要介绍。

一、非平衡统计的有关理论和方法

本世纪后半叶以来,关于大量粒子运动的非平衡统计理论逐渐受到人们的重视,已被逐步整理归纳在有关专著和教科书中^[1]。本节将简述其要点,作为处理有关理论问题时的参考。

1. 玻耳兹曼方程

在时间 t 时,粒子在坐标 q 和动量 p 空间

的分布函数 $f(q, p, t)$ 的变化遵从玻耳兹曼方程:

$$\frac{\partial f}{\partial t} = \left[\frac{\partial f}{\partial t} \right]_{\text{正移}} + \left[\frac{\partial f}{\partial t} \right]_{\text{碰撞}} \quad (1)$$

这是非平衡统计中的基本方程,很多理论工作都是围绕这一过程展开。

2. BBGKY 方程链

BBGKY 方程链是 Bogoljubov-Born-Green-Kirkwood-Yvon 方程链的简称,通过这一方程链可以找到粒子分布函数在外加势和相互作用势作用下的变化情况,这对描述激光作用下的粒子运动是有用的。

3. 马尔可夫过程

若一随机变量在 t_n 时取 X_n 值的条件几率仅与 t_{n-1} 时取 X_{n-1} 值有关,而与更早的取值无关,则称为马尔可夫过程。这可以使我们处理问题的方法简化,在大多数情况下,这一简化是合理的。

4. 朗之万方程

该方程描写布朗运动中的粒子在 x 方向运动时,其速度变化率 \dot{v} 和速度 v 及随机力 $f(t)$ 的关系

$$\dot{v} = -\gamma v + f(t), \quad (2)$$

1) 中国科学院院长基金特别支持项目和国家自然科学基金资助项目。

其中 γ 为阻力系数, 因平均值 $\langle f(t) \rangle = 0$, 故宏观方程 $\langle \dot{v} \rangle = -\gamma \langle v \rangle$, 这使微观到宏观的转化简单明了。

5. 福克-普朗克方程

由广义朗之万方程引伸可得福克-普朗克方程

$$\frac{\partial p(x, t)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial t} [K(x)p(x, t)] + \frac{D}{2} \frac{\partial^2 p(x, t)}{\partial x^2}, \quad (3)$$

其中 $p(x, t)$ 为几率分布函数, $K(x)$ 为粒子迁移函数, D 为随机力涨落值, 从而可以得知粒子运动几率的变化情况。

6. 时间反演不对称性

与非平衡过程有关的基本方程大都含有随机项。在这些方程中, 当时间 t 变为 $t' = -t$ 时, 方程变号而显示时间反演的不对称性。这些方程都是不可逆的。

二、激光脉冲激发下的非平衡声子动态过程^[2]

1. 声子的玻耳兹曼方程

在低温下金属铜中的电子-电子散射时间 $\tau_{ee} = 2.1 \times 10^{-13}$ s, 而其中的电子-声子散射时间约为 $\tau_{ep} \approx (2-10) \times 10^{-10}$ s ($T = 2$ K), 后者远大于前者。可知电子和声子每相互作用一次, 电子和电子要相互作用上千次。因此电子系统好象总是处于动力学平衡状态, 从而可将其看成热库, 而体系的动力学性质主要由电子-声子相互作用下的声子系统来决定。根据 Kadanoff 和 Baym 发展的非平衡格林函数玻耳兹曼方程的普遍形式, 我们有

$$\begin{aligned} & \left(\frac{\partial}{\partial T} + \nabla_q \omega \cdot \nabla_R \right) D_{ij}^{\leftarrow}(\mathbf{q}, \omega; \mathbf{R}, T) \\ & = -D_{ij}^{\leftarrow}(\mathbf{q}, \omega; \mathbf{R}, T) \pi^>(\mathbf{q}, \omega; \mathbf{R}, T) \\ & \quad + D_{ij}^{\leftarrow}(\mathbf{q}, \omega; \mathbf{R}, T) \pi^<(\mathbf{q}, \omega; \mathbf{R}, T), \end{aligned} \quad (4)$$

其中 D_{ij}^{\leftarrow} 和 D_{ij}^{\rightarrow} 为具有波矢 \mathbf{q} 和角频率 ω 的第 i 声子分支的相关函数。 \mathbf{R}, T 分别为空间

和时间变量。在考虑了电子-声子相互作用和三声子相互作用后, 可以求得形式比较复杂的声子玻耳兹曼方程。

2. 数值计算和讨论

为简化计算, 可将声子和电子的非平衡分布函数分解为平衡分布部分和偏离平衡分布的部分。如果只讨论声子扩散膜的衰减, 则声子衰减率可以从玻耳兹曼方程各向同性部分求出。如同时忽略所有梯度关系, 则非平衡分布函数皆与动量的方向无关。于是可求得声子在不同相互作用过程中的衰减率表达式, 其倒数则为每一作用过程所需的时间, 推导见引文 [2]。各个衰减率相应的物理过程如图 1 所示, 数值计算的结果见表 1。

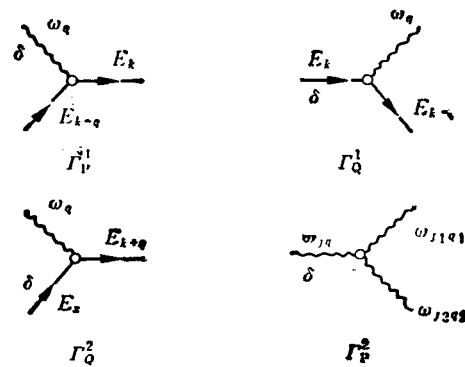


图 1 与声子相关的各衰减过程
(图中实线表示电子, 波纹线表示声子, 线旁的 δ 符号表示非平衡占有几率)

表 1 计算结果

衰减模式	Γ_P^1	Γ_Q^1	Γ_Q^2	Γ_{P1}^2	Γ_{P2}^2
衰减率 (s^{-1})	1.20×10^{10}	1.20×10^{10}	1.76×10^9	3.49×10^7	4.40×10^6
寿命 (s)	8.30×10^{-11}	8.30×10^{-11}	5.68×10^{-10}	2.87×10^{-8}	2.28×10^{-7}

由表 1 可知, $\Gamma_Q^1/\Gamma_Q^2 = 6.8$ 。这意味着高温电子发射声子的速率比平衡声子激发电子的速率快七倍。这从物理上来看, 是可以理解的, 因为高温电子和声子间能量的巨大差异需要经过多次碰撞才能使其和晶格达到平衡。由表 1 同样可见, $\Gamma_Q^1/\Gamma_{P1}^2 = 50.4$ 。这说明高频声子的寿命比电子-声子相互作用时间长, 或者说声子趋于平衡的时间要比电子-声子作用时间更

长, 因为声子-声子碰撞将导致声子气的热平衡。这些计算结果与实验结果^[3]符合较好。

三、一维链中非线性声子交互作用形成的孤子状激发^[4]

1. 脉冲激光激发下的非平衡声子动力学和输运过程

在讨论元过程中声子行为的基础上, 我们研究了声子波包在固体中的输运过程。对于倒格矢 $k_m = 0$ 的正常过程, 由非谐三声子相互作用的哈密顿量表达式出发, 在海森伯表象中, 考虑算符对易关系, 可得声子产生算符的运动方程为

$$i\hbar \frac{\partial b_k^+}{\partial t} = -\hbar\omega_k b_k^+ - \sum_{K_1} V_3 \cdot (K, K_1, K - K_1) b_{K_1}^+ b_{K-K_1}^+ - 2 \sum_{K_1} V_3(K, K_1, K + K_1) \cdot b_{K+K_1}^+ b_{K_1}^+ \quad (5)$$

为了描述波包的运动, 我们定义一个集体模算符 $B_L(x)$ 来表示各种不同波矢 K 声子的叠加效应, 即

$$B_L(x) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_K b_K e^{iKx}, \quad (6)$$

其中 N 为一维链的原子数, 于是可得

$$i \frac{\partial B_L^+(x)}{\partial t} = -\omega_K B_L^+(x) - iV_{ph} \frac{\partial B_L^+(x)}{\partial x} + 2iV_{an} B_L^+(x) \frac{\partial B_L(x)}{\partial x} - 2 \frac{V_3(2K, K, K)}{\hbar} \cdot B_L^+(x) B_L(x), \quad (7)$$

其中

$$V_{ph} = \frac{\partial \omega_K}{\partial K}, \quad V_{an} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial V(K, K_1, K + K_1)}{\partial K_1} \Big|_{K_1=K}$$

2. 集体模的包络孤子解

在低温和集体模低激发态的情况下, 可将量子力学方程(7)处理成经典方程式, 或者说把

物理

算符 $B_L(x)$, $B_L^+(x)$ 近似代之以 C 数(可交换数)。经推导和简化, 得振幅模的平方为

$$B^2 = A \operatorname{sech}[2/\delta_0(\tau - \tau_0)], \quad (8)$$

其中 δ_0 为脉冲宽度, $\tau = x/v - t$, v 为所求声子脉冲的传播速度。(8)式描述的正是所谓的包络孤子解。这一表达式所描写的过程类似于非线性光学中的自诱导透明现象^[5]。

四、无序固体低温下声子输运的量子理论^[6]

1. 两能级隧道态模型^[7,8]

隧道理论认为, 任何玻璃系统中都有一定数量的原子或原子团处于两种平衡位置, 而粒子在这两种能量状态中, 可以通过量子力学的隧道效应从一种位形变换到另一种位形。

2. 极低温下非晶绝缘固体热导率的 T^2 关系

许多文献从理论和实验两方面报道了极低温下非晶绝缘物体的热导率 κ 和绝对温度 T 的平方成正比, 即

$$\kappa = \frac{1}{6\pi} \frac{k_B^3 \rho}{\hbar^2 P_0 M^2} T^2, \quad (9)$$

其中 k_B 为玻耳兹曼常数, ρ 为声子能量密度, V 为体积, P_0 为几率, M 为哈密顿量的矩阵元。(9)式所表述的情况与通常固体的表现不同。

3. 非晶态低温反常热导率的量子理论^[6]

已有理论在处理玻耳兹曼方程时, 利用了弛豫时间近似的半经典方法。下面尝试从声子在无序固体中的输运性质入手, 由玻耳兹曼方程出发, 利用量子力学的跃迁理论讨论声子输运过程, 具体计算声子与隧道态的相互作用, 从更基本的物理图象上来考虑这一问题。

假定热流仍由声子运载, 试样热端产生过剩声子并扩散到冷端, 声子气的密度分布函数 $n(\lambda, r, t)$ 满足玻耳兹曼方程:

$$\partial n / \partial T + v_\lambda \cdot \nabla_r n = C_{[\lambda]}, \quad (10)$$

其中 v_λ 为声子群速度, $C_{[\lambda]}$ 为碰撞项, λ 为不同声子的标志。在极低温下, 声子气十分稀薄, 声子之间的相互作用微弱, 而大块非晶绝缘固体中边界散射亦可忽略, 因而 $C_{[\lambda]}$ 中仅有声

子与隧道态间的碰撞项 C_1 起主要作用, 而稳态下 $\partial n/\partial t = 0$, 仅第二项起作用, 即

$$v_x \cdot \nabla_r T dn/dT = C_1. \quad (11)$$

在热力学平衡条件下, 隧道态基态的几率 A_1 与激发态的几率 A_2 分别为

$$A_1 = \frac{1}{1 + e^{-E/k_B T}}, \quad (12)$$

$$A_2 = \frac{1}{1 + e^{E/k_B T}}. \quad (13)$$

经计算可求得态间的跃迁几率 P_1 与 P_2 , 从而求得

$$C_1 = \frac{\pi M^2 k P(E)}{\rho v} \cdot \left(\frac{n+1}{1 + e^{E/k_B T}} - \frac{n}{1 + e^{-E/k_B T}} \right), \quad (14)$$

其中 $P(E)$ 为单位体积中两能级系统的态密度。

令 $n = n_0 + n_1$, 其中 n_0 为热平衡时的声子数, 符合玻色分布, 于是可得

$$n_1 = \left\{ \frac{e^{E/k_B T}}{(e^{E/k_B T} - 1)^2} (\hbar\omega/k_B T^2) \times v_x \cdot \nabla_r T \right\} / \left\{ (\pi M^2 k P(E)/\rho v) \times [1/(1 + e^{E/k_B T}) - 1/(1 + e^{-E/k_B T})] \right\}. \quad (15)$$

单位体积固体中的热流 Q 为

$$Q = \frac{1}{V} \sum_i n_i(\lambda) \hbar\omega_i v_{i,x}. \quad (16)$$

再由热导率的定义可知

$$Q = -\kappa \nabla T. \quad (17)$$

将(16)式和(17)式进行对照并计算, 得

$$\kappa = 9.87 (k_B^3 \rho v / 2\pi^3 \hbar^2 M^2 P_0) T^2. \quad (18)$$

于是导出了热导率的 T^2 规律, 并且避免采用一些近似方法, 物理图象更为清晰。

五、瞬态激光作用下温度和长度变化的不同步效应^[9]

热膨胀动态过程的理论和实验研究我们已经报道过多次^[10-12], 但在实验中仅测定了试样长度的瞬态变化, 试样在厚度方向的温度变化是由热传导方程推算的。然而在薄试样的瞬态加热中, 这一计算结果是否仍然有效, 尚需实验

证明, 下面介绍这方面的新进展。

1. 瞬态温升测定

为测定 $0.1\mu\text{s}$ 脉冲激光作用下箔状试样的瞬态升温过程, 我们研制了一种高速红外辐射温度计。以碲镉汞 (Hg, Cd) Te (PV 型) 为红外辐射接收和转换元件, 77 K 时的响应时间为 $0.001\mu\text{s}$ 。其信号经低噪声前置放大器放大 1500 倍, 带宽为 $200\text{Hz} - 5\text{MHz}$, 整个装置的响应时间不超过 $0.05\mu\text{s}$, 测温范围为室温至 300°C , 所测温度值经过静态校正。

2. 瞬态膨胀测定

基本装置与以前所报道者使用的相同, 只是高速采样和信号处理系统更加完善, 所用试样为 $20\mu\text{m}$ 和 $50\mu\text{m}$ 厚的铝箔。长和宽为 $20 \times 5\text{mm}$, 测定时, 试样整个前表面受脉冲激光均匀加热。

3. 试样长度变化落后于温度变化的非热惯性效应

当箔状试样在厚度方向受到 $0.1\mu\text{s}$ 的脉冲激光加热后, 其背面温度升高情况和延伸方向(沿长度方向)的长度变化经归一化后示于图 2, 以便对照。由图 2 可见, 大约在 $20\mu\text{s}$ 前, 长度变化一直落后于温度变化, 这种非热惯性的滞后效应是首次从实验上观察到。

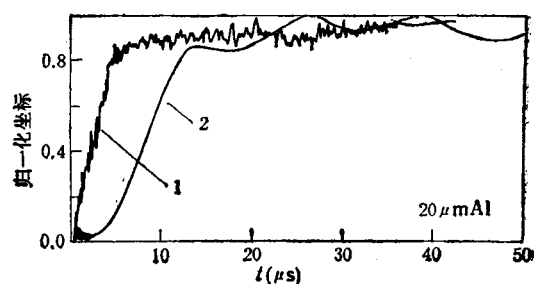


图 2 温升和热膨胀随时间变化情况的对比
(1——温升; 2——热膨胀)

4. 温度长度变化不同步效应的启示

我们于 80 年代初期曾从理论上预测, 任何物体在瞬态加热时均会出现热膨胀的滞后现象, 即所谓热膨胀的动态过程。试样加热后的电阻率变化间接证实了这一现象^[13]。其后的实

验^[4]对长度变化进行了直接的观测,进一步证实了热膨胀动态过程的存在。近期的实验更加清楚地显示出温度长度变化的不同步效应和瞬态应力的消长过程^[5]。这正是瞬态激光作用下固体中所发生的弛豫过程在宏观上的表现。

本文在理论方面所讨论的内容包括激光光子激发下固体中电子-电子相互作用,电子-声子相互作用和声子-声子相互作用。计算结果和实验结果还有一定差距,主要体现在声子的微观运动和固体的宏观变化之间如何过渡还没有具体计算出来,二者的时间过程大约还差一至两个数量级,这正是我们下一步理论工作所面对的问题。在实验观测方面,应该进一步观测各类试样中的热膨胀滞后效应和这类现象随环境温度的变化情况。在近期的工作中我们已经初步找到了解释这种差距的物理模型,定量计算正在进行中。滞后效应随温度变化的趋势已

有了初步实验结果。

- [1] L. P. Kadanoff and G. Baym, *Quantum Statistical Mechanics*, Benjamin, New York, (1962).
- [2] J.X.Li and B. L. Zhou, *J. Phys.: Cond. Matt.*, **4**(1992), 1015.
- [3] H.J. Maris, *J. Phys. (Paris)*, **33**(C4)(1972),3.
- [4] B. L. Zhou, *Proc. 3rd Asian Therm. Prop. Conf.*, (1992), 1.
- [5] H. Haken and A.Schenzle, *Z. Phys.*, **258**(1973), 231.
- [6] W.L.Zhao and B.L. Zhou, *J.Phys.: Cond.Matt.*, **4**(1992), L25.
- [7] P. W. Anderson et al, *Phil. Mag.*, **25**(1972),1.
- [8] W.A.Phillips, *J.Low Temp. Phys.*, **7**(1972),351.
- [9] D.W. Tang., B.L. Zhou. H. Cao and G. H. He, *Appl. Phys. Lett.*, **59**(1991), 3113.
- [10] B.L.Zhou, *Proc. 1st. Asian Therm. Prop. Conf.*, China Academic Publishers, (1986), 39.
- [11] 周本濂, *高压物理学报*, **2**(1988), 119.
- [12] B.L.Zhou, *Proc. 2nd Asian Therm. Prop Conf.*, Sapporo, Japan, (1989), 17.
- [13] C. F. Xu, B. L. Zhou and Q. H. Ye, *Proc. 1st Asian Therm. Prop. Conf.*, (1986), 587.
- [14] 唐大伟、周本濂、何冠虎, *高压物理学报*, **3**(1989),107.
- [15] D.W. Tang et al., *J. Appl. Phys.*, **73**-8(1993).

脆性光学材料超精密加工技术

阎纪旺 于骏一

(吉林工业大学, 长春 130025)

如何在光学晶体、光学玻璃等脆性材料上高效地制取纳米级光学表面是现代超精密加工技术领域的重点研究课题。近年来,此项技术取得了突破性进展,出现了浮法抛光、离子束加工、韧性加工等新一代脆性光学材料超精密加工技术。从加工机理、加工精度、表面质量、生产率等方面对其进行分析比较,并讨论了令人瞩目的韧性加工技术。

一、脆性光学材料

在日新月异的光学领域里,脆性光学材料得到了极为广泛的应用。光学玻璃是最为常用的光学材料,例如制造透镜、棱镜等的硅酸盐玻璃,用于制造高速飞行器光学窗口的石英玻璃以及天文望远镜和激光技术中应用的微晶玻璃等。光学晶体也因其具有独特的光学性能而被越来越多地应用在光学系统中。譬如,锗(Ge)

单晶在红外波段具有很高的透过率和折射率,非常适合做红外透镜之类的光学元件;又因它熔点高、导热性好、化学性质稳定而被用作人造卫星、导弹、红外探测仪等的窗口材料。LN(铌酸锂 LiNbO_3)和KDP(磷酸二氢铵 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$)是常用的电光晶体和变频晶体,它们在激光技术中用得很多。

光学玻璃、光学晶体的应用虽十分广泛,但这类材料的特点是脆性大,可加工性差。所谓脆性大,是指材料的弹性极限与强度极限非常