Журнал технической физики, 2017, том 87, вып. 12

01

Спектр электронов при холодной нелинейной эмиссии из металла под действием лазерного импульса

© П.А. Головинский,[1,2] Е.А. Михин[1]

[1] Лаборатория физических исследований,
Воронежский государственный архитектурно-строительный университет,
394006 Воронеж, Россия
[2] Московский физико-технический институт (государственный университет),
141700 Долгопрудный, Россия
e-mail: golovinski@bk.ru

(Поступило в Редакцию 25 февраля 2016 г. В окончательной редакции 13 июня 2017 г.)

Рассмотрена нелинейная эмиссия электронов из металла под действием фемтосекундного лазерного импульса умеренной интенсивности. Построена теоретическая модель процесса на основе одномерного нестационарного уравнения Шредингера в полупространстве вакуума с заданными граничными условиями для волновой функции электрона, при решении которого применяется преобразование Лапласа. Считается, что лазерное поле слабо возмущает состояния свободных электронов в металле, описываемые в рамках теории металлов Зоммерфельда. Получен энергетический спектр вылетевших электронов и исследована его зависимость от параметров лазерного импульса. Результат расчета спектра нелинейной эмиссии электронов из вольфрамовой наноиглы под действием лазерного импульса с напряженностью 9.26 V/nm и длительностью 6.5 fs согласуется с экспериментальными данными.

DOI: 10.21883/JTF.2017.12.45195.1779

Введение

Внимание к изучению взаимодействия лазерного излучения с поверхностью металла в значительной мере обусловлено развитием лазерных приложений, связанных с наблюдением, управлением и диагностикой различных наноразмерных объектов [1–3]. Исследование эмиссии электронов, сопровождающей этот процесс, стало возможным практически сразу после начала широкого использования лазеров в экспериментальной физике [4]. В первых экспериментах с лазерными импульсами достаточно большой длительности нелинейные по полю эффекты не были обнаружены, поскольку возникновение электронной эмиссии вызывалось нагреванием мишени, т.е. процесс сводился к термоэмиссии [5–7]. С появлением технологии уменьшения длительности лазерных импульсов картина эмиссии существенно меняется. При длительностях в несколько пикосекунд происходит нарушение теплового равновесия между электронами и кристаллической решеткой, приводящее к увеличению тока эмиссии, и для теоретического описания экспериментальных наблюдений применимы двухтемпературные модели с разными температурами решетки и электронов [8].

При длительности лазерного импульса меньше времени электрон-фононной релаксации, которая составляет величину ~ 1 ps, удается избежать существенного нагрева мишени даже для сравнительно высоких лазерных интенсивностей $\sim 30\,\mathrm{GW/cm^2}$ [9,10]. Современные установки позволяют получать лазерные импульсы длительностью в несколько фемтосекунд. Эмиссия электронов из металла под действием таких импульсов происходит без термализации электронов, поскольку времени для релаксации электронной компоненты недостаточно. Начальное состояние ансамбля электронов в металле не успевает заметно измениться за время действия лазерного импульса, и наблюдается значительная нелинейная эмиссия, являющаяся альтернативой холодной эмиссии электронов в электростатическом поле, которая активно исследуется для наноэмиттеров [11–13].

Описание процесса нелинейной холодной эмиссии электронов из металла в низкочастотном лазерном поле, как правило, происходит по двум возможным схемам. В основе первой лежит нестационарное уравнение Шредингера, начальное состояние электрона при этом описывается в рамках зонной модели [14], а конечное состояние строится в виде функции с волковской фазой, включающей в себя взаимодействие с электромагнитным полем [15]. Далее вычисляются матричные элементы для амплитуды перехода электрона в конечные состояния, и на их основе получается энергетический спектр. Вторая схема развивается в рамках теории зависящего от времени функционала плотности с использованием формализма Кона–Шема [16]. При этом электроны в металле считаются независимыми, а их движение происходит в некотором эффективном потенциале, создаваемом ионами кристаллической решетки при наличии обменного взаимодействия и электронной корреляции. Для расчета процесса электронной эмиссии из металла под действием фемтосекундного лазерного импульса уравнения Кона–Шема можно решить численно, например, методом Кранка–Николсона.

Вычислительные трудности, связанные с использованием обеих рассмотренных схем, снижают их привлекательность. В настоящей работе построена аналитическая модель нелинейной холодной эмиссии электронов из металла под действием фемтосекундного лазерного импульса, лишенная указанного недостатка и дающая хорошее согласие с экспериментом.

Математическая модель нелинейной эмиссии

В основе классической теории Фаулера–Нордгейма (ТФН) [17] для холодной эмиссии электронов с поверхности металла под действием постоянного однородного электрического поля лежит предположение о том, что электроны зоны проводимости ведут себя подобно свободным частицам, движение которых в объеме металла ограничено силами двойного электрического слоя на границе раздела металл–вакуум. Наличие этого слоя приводит к скачку потенциальной энергии, в результате чего электрон отражается от границы, если его энергия недостаточна для преодоления потенциального барьера. Внешнее электрическое поле снижает потенциальный барьер, он приобретает конечную ширину, и возникает туннельный отрыв электронов, ведущий к холодной эмиссии.

Действие переменного электрического поля приводит к нестационарности процесса эмиссии. Для построения модели нелинейной холодной эмиссии электронов из металла под действием электромагнитного импульса ультракороткой длительности рассмотрим падение лазерного луча на плоскую металлическую поверхность в вакууме под большим углом к нормали (рис. 1, a). В этом случае имеется нормальная к поверхности составляющая электрического поля, вызывающая эмиссию электронов. Направим координатную ось Ox перпендикулярно поверхности, и выберем ее начало на границе раздела металл–вакуум. В духе ТФН будем считать, что потенциальная энергия электрона в металле представляет собой ступенчатую функцию переменной x (рис. 1, b), а начальное распределение электронов по энергии соответствует статистике Ферми–Дирака.

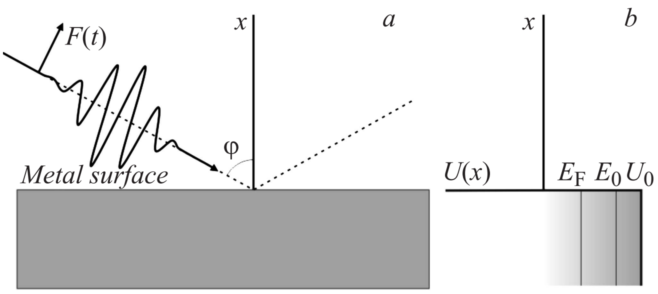

Рис. 1. Схематическое изображение падения лазерного луча на поверхность металла (a) и распределения свободных электронов по энергии (b). U_0 — энергия электрона на дне зоны проводимости, E_F — энергия Ферми, E_0 — энергия уровня в зоне проводимости.

Характеризуя действие внешнего лазерного поля нормальной компонентой векторного потенциала $A(t)$, запишем одномерное уравнение Шредингера для электрона в вакууме в виде

$$i\,\frac{\partial\psi(x,t)}{\partial t}=\frac{1}{2}\left(\hat{p}+\frac{1}{2}A(t)\right)^2\psi((x,t),\quad x>0. \tag{1}$$

Обозначения в уравнении (1) являются стандартными, и используется атомная система единиц: $m=\hbar=e=1$. Взаимодействие электрона с полем вне металла учтено в дипольном приближении.

До начала действия на металл поля лазерного излучения волновая функция электрона в области вакуума экспоненциально убывает с возрастанием x [18]:

$$\psi-C\exp(-\kappa x)\exp(-iE_0t),\quad x>0. \tag{2}$$

Здесь E_0 — энергия электрона, $\kappa=\sqrt{2|E_0|}$. Соответствующие граничные условия имеют вид

$$\psi(0,t)=\alpha(t)=C\exp(-iE_0t),$$
$$\psi'_x(0,t)=\beta(t)=-\kappa C\exp(-iE_0t). \tag{3}$$

Штрихом в (3) обозначена производная по пространственной переменной. Рассматривая лазерный импульс, длительность которого составляет несколько фемтосекунд, а напряженность электрического поля относительно невелика, так что $F\ll\kappa|E_0|$, примем, что за время его действия волновые функции внутри металла меняются незначительно, и сохраняются граничные условия (3).

В рамках сформулированной модели описание нелинейной холодной эмиссии электронов сводится к решению одномерного нестационарного уравнения Шредингера (1) на полуоси $x>0$ при выполнении граничных условий (3). Такая формулировка задачи, а также отсутствие в дипольном приближении зависимости векторного потенциала A от координаты x, обусловливают удобство использования для нахождения решения преобразования Лапласа

$$f(s,t)=\int\limits_0^\infty\exp(-sx)\psi(x,t)dx, \tag{4}$$

где $f(s,t)$ — изображение функции $\psi(x,t)$, s — комплексная переменная [19].

Вводя колебательную скорость электрона в поле волны $v(t)=A(t)/c$, запишем уравнение (1) в виде

$$i\,\frac{\partial\psi}{\partial t}=-\frac{1}{2}\,\frac{\partial^2\psi}{\partial x^2}-iv(t)\,\frac{\partial\psi}{\partial x}+\frac{v^2(t)}{2}\,\psi. \tag{5}$$

Применив к (5) преобразование (4), получим в пространстве изображений уравнение

$$i\,\frac{\partial f(s,t)}{\partial t}=\frac{1}{2}\left(-is+v(t)\right)^2f(s,t)$$
$$+\left\{s\,\frac{\alpha(t)}{2}+\frac{\beta(t)}{2}+iv(t)\alpha(t)\right\}. \tag{6}$$

Решение уравнения (6) записывается в квадратурах через классическое смещение электрона в поле волны

$$a(t, t_1) = \int_{t_1}^{t} \nu(t_2) dt_2 \tag{7}$$

и интеграл от его кинетической энергии

$$S(t, t_1) = \int_{t_1}^{t} \frac{\nu^2(t_2)}{2} dt_2 \tag{8}$$

в виде

$$f(s, t) = -i \int_0^t \left(s \, \frac{\alpha(t_{21})}{2} + \frac{\beta(t_1)}{2} + i\nu(t_1)\alpha(t_1) \right) \times \exp\left\{ i \left(\frac{s^2(t - t_1)}{2} + is\alpha(t, t_1) - S(t, t_1) \right) \right\} dt_1. \tag{9}$$

Замена $s = ip$ в выражении (9) дает решение уравнения Шредингера в импульсном представлении, и нахождение распределения вылетевших электронов по импульсу, соответствующее моменту окончания действия лазерного поля T, сводится к вычислению интеграла

$$f(p, T) = -iC \int_0^T \left(\frac{ip}{2} - \frac{\kappa}{2} + i\nu(t_1) \right) \exp(-iE_0 t_1) \times \exp\left\{ i \left(-\frac{p^2(T - t_1)}{2} - pa(T, t_1) - S(T, t_1) \right) \right\} dt_1. \tag{10}$$

Вычислить аналитически интеграл в уравнении (10) в общем случае не удается, а прямое использование численных методов затрудняют быстрые осцилляции подынтегральной функции. В этом случае оправданным является применение метода перевала [20], учитывающего наибольший вклад в интеграл области вблизи стационарных точек, положение которых определяется из решения уравнения

$$\frac{\partial}{\partial t_1} \left(-\frac{p^2(T - t_1)}{2} - pa(T, t_1) - S(T, t_1) \right) = 0. \tag{11}$$

Аналогичное приближение использовано в теории многофотонной ионизации Келдыша [21,22]. Его применимость не ограничена конкретными формами лазерных импульсов, за исключением требования малости несущей частоты ω по сравнению с пороговой частотой однофотонной ионизации: $|E_0|/\omega \gg 1$. Уравнение (11) для отыскания стационарных точек решается численно, после чего методом стационарной фазы находится первое приближение для функции $f(p, T)$. Полученная зависимость уточняется путем численного решения дифференциального уравнения (6) с использованием неявного метода Адамса–Мултона [23].

Функция $f(p, t)$ позволяет записать выражение для энергетического распределения электронов в виде

$$\frac{dN_e}{dE} = \frac{\left| f(\sqrt{2E}, T) \right|^2_{T=\infty}}{\sqrt{2E}}. \tag{12}$$

Выражение (12) описывает спектр вылетевших электронов, имеющих в начальный момент времени фиксированную энергию E_0. Для получения полного спектра следует учесть, что электроны в металле распределены по начальной энергии. Согласно теории металлов Зоммерфельда, число электронных состояний в единице объема металла, приходящихся на единичный интервал энергии, определяется уравнением

$$\frac{dn_e}{dE_0} = \frac{1}{\pi^2} \frac{\sqrt{2(E_0 - U_0)}}{1 + \exp\left(\frac{E_0 - E_F}{k\theta} \right)}, \tag{13}$$

где θ — температура металла, k — постоянная Больцмана. Использование в уравнении (13) вместо химического потенциала энергии Ферми оправдано при комнатной температуре с погрешностью $\sim 10^{-3}$ eV.

Произведя интегрирование по начальным электронным состояниям с учетом (13), получим итоговую формулу, определяющую энергетический спектр вылетевших электронов

$$\frac{dN_e}{dE} = \frac{1}{\pi^2} \int_{U_0}^{E_F} \sqrt{\frac{E_0 - U_0}{E}} \left(1 + \exp\left(\frac{E_0 - E_F}{k\theta} \right) \right)^{-1} \times \left| f_{E_0}(\sqrt{2E}, T) \right|^2_{T=\infty} dE_0. \tag{14}$$

Значение $|E_F|$совпадает с величиной работы выхода электрона из металла, а $U_0 = E_F - \pi^{1/3}(3n_0/8)^{2/3}$ (n_0 — концентрация свободных электронов в металле). Основной вклад в интеграл (14) дает область вблизи энергии E_F из-за быстрого уменьшения величины $\left| f_{E_0}(\sqrt{2E}, T) \right|^2_{T=\infty}$ для глубоких начальных электронных уровней.

Влияние параметров лазерного импульса на спектр электронов

Конкретный вид энергетического спектра электронов, образующихся в результате нелинейной холодной эмиссии из металла, зависит от параметров лазерного импульса. Будем считать, что изменение напряженности электрического поля во времени определяется выражением

$$F(t) = F_0 \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2} \right) \cos(\omega t), \tag{15}$$

где F_0 — амплитуда напряженности, ω — частота несущей лазерного импульса, τ — параметр длительности импульса.

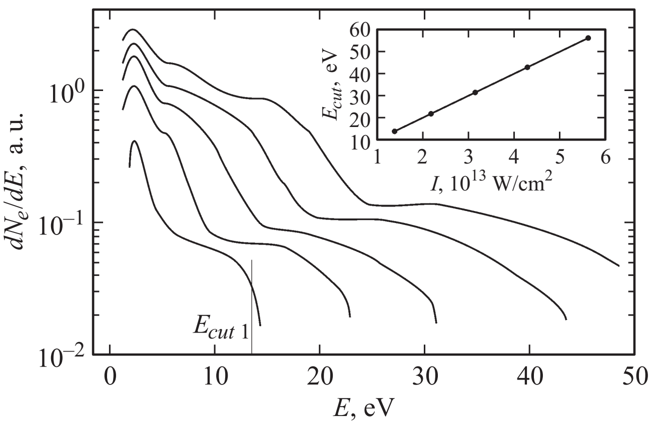

Рис. 2. Энергетический спектр вылетевших электронов. Кривым снизу вверх соответствуют значения амплитуды напряженности лазерного поля $F_0 = 10$, 12, 15, 18, 20 V/nm при $\lambda = 800$ nm, $\tau = 7$ fs.

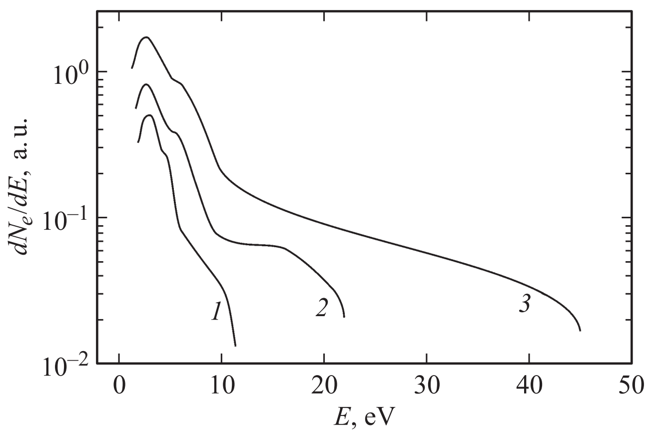

Рис. 3. Энергетический спектр вылетевших электронов. Кривая *1* соответствует значению $\lambda = 600$, *2* — 800, *3* — 1200 nm. Амплитуда поля лазерного импульса $F_0 = 12$ V/nm, длительность $\tau = 7$ fs.

В качестве примера была рассмотрена мишень в виде пластины из золота с работой выхода 4.83 eV [24]. На рис. 2 представлены результаты расчетов влияния амплитудного значения напряженности поля на энергетический спектр вылетевших электронов для значений F_0, лежащих в интервале 10−20 V/nm. Полученные кривые имеют характерный максимум вблизи однофотонного порога ионизации электрона из металла, вслед за которым расположен участок плато. Затем при достижении энергии отсечки электронов E_{cut}, наблюдается резкий спад интенсивности спектра. С ростом амплитуды напряженности лазерного поля при прочих фиксированных параметрах происходит увеличение энергии отсечки и общего числа эмитированных электронов. Показанная на вставке рис. 2 зависимость E_{cut} от пиковой интенсивности лазерного поля свидетельствует о наличии линейной связи между этими величинами. Угол наклона прямой линии к оси абсцисс равен $41.5\,\text{eV}/4.2 \cdot 10^{13}\,\text{W/cm}^2$.

Энергетический спектр электронов зависит от несущей длины волны лазерного излучения λ. Как видно из результатов расчетов, приведенных на рис. 3, при увеличении длины волны участок плато в спектре становится шире. Рост энергии отсечки пропорционален λ^2 в соответствии с изменением колебательной энергии электрона в поле волны. Так, для кривых *1* и *3* на рис. 3 значения длин волн отличаются в 2 раза, а E_{cut} — в 4 раза.

Для оценки влияния длительности лазерного импульса на эмиссию рассчитан энергетический спектр электронов при различных значениях параметра τ, в то время как остальные параметры импульса постоянны. Результаты расчета представлены на рис. 4. С уменьшением длительности импульса происходит уширение спектра лазерного излучения, поэтому имеется некото-

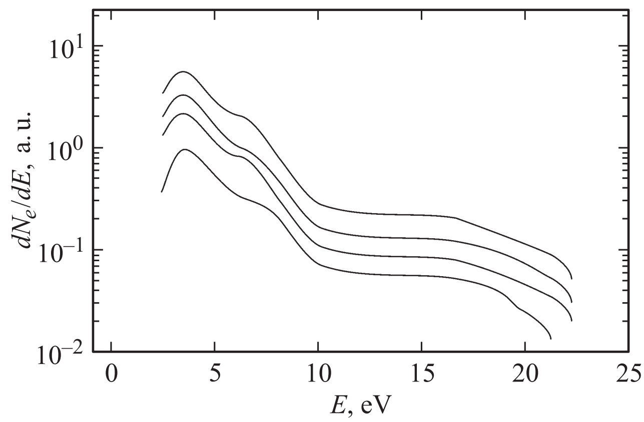

Рис. 4. Энергетический спектр вылетевших электронов. Кривым снизу вверх соответствуют значения параметра $\tau = 4$, 8, 16, 32 fs. Напряженность поля $F_0 = 12$ V/nm, несущая длина волны $\lambda = 800$ nm.

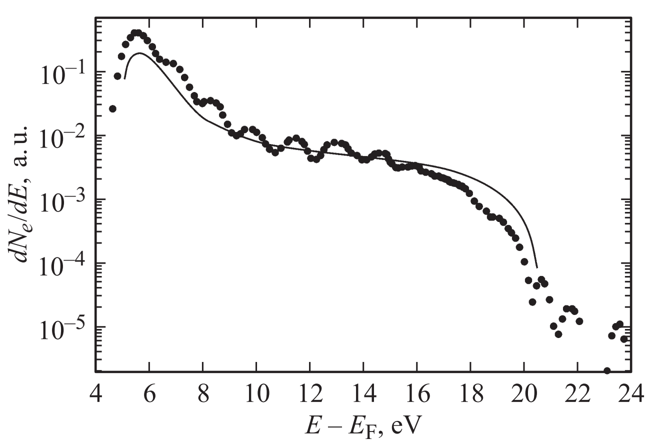

Рис. 5. Сравнение результатов расчетов спектра электронов (сплошная кривая) с экспериментальными данными [16], отмеченными точками. Значения энергии отсчитываются от уровня Ферми.

рое отличие формы кривой, соответствующей $\tau = 4\,\text{fs}$, вблизи энергии отсечки от форм других спектральных кривых, относящихся к более длинным импульсам. Дальнейший рост τ не меняет существенно формы спектра, а приводит главным образом к увеличению общего числа эмитированных электронов.

Варьируя значение энергии лазерного импульса, размеры, состав и геометрию облучаемой мишени, можно получать электронные пучки фемтосекундной длительности с различной энергией электронов [1,25]. На рис. 5 представлено сравнение результатов расчетов спектра электронов, выполненных в рамках предложенной модели, с экспериментальными данными [16]. При численном моделировании использовались следующие параметры: длина волны лазерного излучения 800 nm, длительность лазерного импульса на половине максимума интенсивности $\sim 6.5\,\text{fs}$ ($\tau \sim 13\,\text{fs}$), максимум напряженности лазерного поля $F_0 = 9.26\,\text{V/nm}$. Мишень представляла собой иглу из вольфрама с работой выхода электронов 5.22 eV и радиусом закругления острия $\sim 8\,\text{nm}$. Выбор мишени в виде наноиглы обеспечивает существенное усиление лазерного поля вблизи поверхности мишени [26,27]. Экспериментальное значение напряженности лазерного поля взято с учетом этого эффекта.

Результаты численного моделирования показывают, что предложенное теоретическое описание холодной эмиссии электронов из металлической поверхности под действием ультракороткого лазерного импульса согласуется с экспериментальными данными. Воспроизведена величина энергии отсечки, положение главного максимума в спектральном распределении электронов, а также наклон кривой в центральной части спектра. Следует отметить, что остается определенное расхождение теории и эксперимента вблизи главного максимума и вблизи энергии отсечки.

Заключение

Нелинейная холодная эмиссия электронов из металла под действием ультракороткого лазерного импульса может быть описана в рамках предложенной одномерной модели. С ее помощью проведено исследование влияния параметров лазерного импульса на энергетический спектр вылетевших электронов. Сравнение результатов теоретических расчетов с экспериментальными данными показывает, что модель хорошо воспроизводит общий вид спектра. Наличие в спектре локальных пиков, по всей видимости, связано с интерференцией между электронами, обладающими одинаковой кинетической энергией в конечном состоянии и эмитированными из разных участков поверхности. Эта модуляция спектра не воспроизводится при теоретическом описании в рамках представлений о резкой однородной границе металла. Численное моделирование рассматриваемого процесса, проделанное в [16] на основе теории зависящего от времени функционала плотности с учетом воздействия внешнего поля на электронный газ в металле, также дает некоторое расхождение с экспериментальными результатами. С хорошей точностью прописывается само положение пиков в интерференционной картине, но не их относительные величины. Для устранения отмеченного несоответствия теории и эксперимента требуется проведение дополнительных исследований.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ в рамках базовой части государственного задания в сфере научной деятельности (заявка № 3.6369.2017/БЧ) и РФФИ (грант №16-32-00255).

Список литературы

[1] *Paarmann A., Gulde M., Muller M., Schafer S., Schweda S., Maiti M., Xu C., Hohage T., Schenk F., Ropers C., Ernstorfer R.* // J. Appl. Phys. 2012. Vol. 112. P. 113109-1–113109-10

[2] *Germann M., Latychevskaia T., Escher C., Fink H.-W.* // Phys. Rev. Lett. 2010. Vol. 104. P. 095501-1–095501-4.

[3] *Chen Z.L., Zhang J., Liang T.J., Teng H., Dong Q.L., Li Y.T., Zhang J., Sheng Z.M., Zhao L.Z., Tang X.W.* // At. Mol. Opt. Phys. 2004. Vol. 37. P. 539–546.

[4] *Анисимов С.И., Бендерский В.А., Фаркош Д.* // УФН. 1977. Т. 122. С. 185–222 .

[5] *Lichtman D., Ready J. F.* // Phys. Rev. Lett. 1963. Vol. 10. P. 342–347.

[6] *Verber C.M., Adelman A.H.* // J. Appl. Phys. 1965. Vol. 36. P. 1522–1531.

[7] *Honig R.E., Woolston J.R.* // Appl. Phys. Lett. 1963. Vol. 2. P. 138–143.

[8] *Li L., Zhou L., Shan Y., Zhang Y.* // Int. J. Thermophys. 2015. Vol. 36. P. 183–189.

[9] *Fujimoto J.G., Liu J.M., Ippen E.P.* // Phys. Rev. Lett. 1984. Vol. 53. P. 1837–1844.

[10] *Elsayed-Ali H.E., Norris T.B., Pessot M.A., Mourou G.A.* // Phys. Rev. Lett. 1987. Vol. 58. P. 1212–1220.

[11] *Лупехин С.М., Ибрагимов А.А.* // ЖТФ. 2011. Т. 81. С. 109-112.

[12] *Васильков М.Ю., Федоров Ф.С., Ушаков Н.М., Суздальцев С.Ю.* // Письма в ЖТФ. 2015. Т. 41. С. 57–63.

[13] *Михайлов А.И., Кабанов В.Ф., Жуков Н.Д.* // Письма в ЖТФ. 2015. Т. 41. С. 8–14.

[14] *Faraggi M.N., Gravielle M.S., Silkin V.M.* // Phys. Rev. A. 2004. Vol. 69. P. 042901-1–042901-8.

[15] *Faraggi M.N., Gravielle M.S., Silkin V.M.* // Phys. Rev. A. 2006. Vol. 73. P. 032901-1–032901-7.

[16] *Krüger M., Schenk M., Hommelhoff P., Wachter G., Lemell C., Burgdorfer J.* // New J. Phys. 2012. Vol. 14. P. 085019-1–085019-16.

[17] *Егоров Н.В., Шешин Е.П.* Автоэлектронная эмиссия. Принципы и приборы. Долгопрудный: Интеллект, 2011. 704 с.

[18] *Маделунг О.* Физика твердого тела. Локализованные состояния. М.: Наука, 1985. 184 с.

[19] *Сидоров Ю.В., Федорюк М.В., Шабунин М.И.* Лекции по теории функций комплексного переменного. М.: Наука, 1989. 480 с.
[20] *Федорюк М.В.* Метод перевала. М.: Книжный дом ЛИБРОКОМ, 2010. 369 с.
[21] *Келдыш Л.В.* // ЖЭТФ. 1964. Т. 47. С. 1945–1957.
[22] *Переломов А.М., Попов В.С., Терентьев М.В.* // ЖЭТФ. 1966. Т. 50. С. 1393–1409.
[23] *Кунин С.* Вычислительная физика. М.: Мир, 1992. 522 с.
[24] *Anderson P.A.* // Phys. Rev. 1959. Vol. 115. P. 553–560.
[25] *Головинский П.А., Михин Е.А.* // Письма ЖТФ. 2013. Т. 39. Вып. 10. С. 15–21.
[26] *Wachter G., Lemell C., Burgdörfer J.* // Phys. Rev. B. 2012. Vol. 86. P. 035402-1–035402-5.
[27] *Мануйлович Е.С., Астапенко В.А., Головинский П.А.* // Квантовая электроника. 2016. Т. 46. Вып. 1. С. 50–56.