

УДК 535.215, 537.533

ВЛИЯНИЕ РАЗМЕРОВ ЭЛЕМЕНТОВ СОСТАВНЫХ НАНОАНТЕНН ТИПА “ТАЛСТУК-БАБОЧКА” НА СПЕКТРЫ НАДПОРОГОВОЙ ФОТОЭМИССИИ

К. С. Кислов¹, А. А. Наричц², А. Д. Кондорский²

Проведено численное моделирование эффектов сильного поля, возникающих при взаимодействии фемтосекундных лазерных импульсов с составными наноантеннами типа “талстук-бабочка”. Изучено влияние формы наноантенны и параметров лазерных импульсов на формирование “плато” в энергетических спектрах фотоэлектронов. Показано, что при одних и тех же параметрах лазерных импульсов верхняя граница «плато» может оказаться заметно выше, если размеры элементов наноантенны различны. Дано физическое объяснение данного явления.

Ключевые слова: эффекты сильного поля, наноантенны, плазмонное усиление, надпороговая фотоэмиссия.

Введение. Одним из наиболее актуальных и важных направлений современной лазерной физики является изучение эффектов сильного поля, возникающих при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов на атомно-молекулярные системы в газе и плазме [1–4]. Такие эффекты надпороговой ионизации атомов, как уширение энергетических спектров фотоэлектронов, генерация высоких гармоник излучения и ультракоротких электромагнитных импульсов, оказались крайне важными с прикладной точки зрения [4]. Недавно было экспериментально обнаружено, что аналогичные по физическому механизму явления могут наблюдаться и при облучении фемтосекундными импульсами металлических наноострий [5–10] и наночастиц [11]. Полученные данные свидетельствуют, что при интенсивностях лазера $\sim 10^{11}$ – 10^{12} Вт/см² энергетические спектры электронов фотоэмиссии значительно уширяются. В распределениях по энер-

¹ Московский физико-технический институт (Государственный университет), МФТИ, 141700 Россия, Московская область, г. Долгопрудный, Институтский пер., 9.

² ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: kondor@sci.lebedev.ru.

гиям наблюдалось широкое (порядка десятков эВ) плато. Это явление получило название *надпороговой фотоэмиссии* из наноструктур, по аналогии с известным явлением *надпороговой фотоионизации* атомов и молекул.

Основным механизмом уширения энергетических распределений фотоэлектронов является *перерасcеяние* электрона на родительском ионе или наноструктуре [12]. Процесс состоит из трех шагов. На первом шаге электрон ионизируется посредством полевой эмиссии (или туннельного механизма). При этом после выхода из материала его энергия практически равна нулю. На втором шаге сильное поле разгоняет электрон, благодаря чему он получает дополнительную энергию. Часть электронов улетает от наноструктуры, а часть разворачивается полем лазера и соударяется с наноструктурой (или родительским ионом). На третьем шаге разогнанные электроны взаимодействуют с родительской наноструктурой (или ионом). Такое взаимодействие может приводить к двум результатам. Электроны, которые при таком взаимодействии отражаются от наноструктуры (иона), формируют широкое плато в энергетическом спектре. Электроны, которые рекомбинируют на наноструктуре (ионе), испускают всю энергию в виде высокочастотных фотонов, что вызывает формирование излучения высоких гармоник. Этот процесс генерации высоких гармоник хорошо изучен для случая надпороговой ионизации атомов. Возможность излучения высоких гармоник также и при облучении фемтосекундным лазером металлических наноструктур, в настоящее время обсуждается теоретически [13, 14].

Надпороговая фотоэмиссия из наноантенн имеет ряд особенностей, отличных от надпороговой ионизации атомов. Во-первых, благодаря плазмонному усилению поля можно наблюдать эффекты сильного поля при существенно меньшей интенсивности фемтосекундных лазерных импульсов. Во-вторых, форма, размеры и свойства металла наноструктуры существенно влияют на пространственные распределения электромагнитных полей в ближней зоне наноструктуры. Это открывает широчайшие возможности для управления процессами формирования ультракоротких пучков фотоэлектронов. Особый интерес, с этой точки зрения, представляют составные наноантенны, состоящие из пары близкорасположенных металлических наноструктур. Для таких систем за счет плазмонного усиления возможно получить значительно большую локализацию электромагнитного поля в зазоре между двумя наночастицами, по сравнению с локализацией поля вблизи одиночных наноструктур [15–17].

В настоящей работе проведено компьютерное моделирование и исследована надпороговая фотоэмиссия составной наноантенны типа “галстук-бабочка” (*bowtie*), являю-

щейся аналогом конусных радиочастотных антенн. Целью работы являлось изучение основных механизмов разгона фотоэлектронов, включая процесс упругого рассеяния электронов на родительской наноантенне, а также циклического наращивания энергии ввиду высокого пространственного градиента ближнего поля (*net velocity gain*). Основное внимание было уделено изучению возможности управления процессами фотоэмиссии и разгона электронов за счет варьирования размеров элементов наноантенны и параметров фемтосекундных лазерных импульсов. Для сопоставления результатов и выявления закономерностей были рассмотрены три наноантенны, которые можно собрать из конусов двух размеров – “большого” и “малого” (см. рис. 1). Задача состояла в выявлении особенностей надпороговой фотоэмиссии, которые связаны с присутствием в наноантенне малых и больших элементов, и возможности их комбинации с целью использования преимуществ обоих.

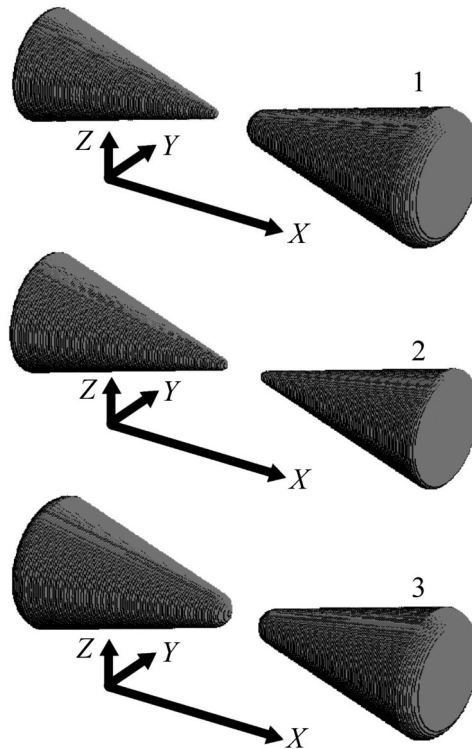


Рис. 1: Основные типы конфигураций исследуемых составных антенн: (1) “асимметричная” антенна, (2) “симметричная малая” антенна, (3) “симметричная большая” антенна.

Теоретическая модель и метод исследования. Компьютерное моделирование динамики фотоэмиссии и разгона фотоэлектрона проводилось в рамках классической

модели «прощачка» [12]. Вычисление пространственных распределений и временных зависимостей электромагнитных полей, возникающих внутри и вокруг нанопантены, проводилось путём численного интегрирования уравнений Максвелла методом конечных разностей во временной области (FDTD) [18]. Для этого в нашей программе была использована библиотека с открытым исходным кодом MEEP (MIT Electromagnetic Equation Propagation) [19]. Моделирование динамики электронов в ближней зоне нанопантены осуществлялось стандартными методами молекулярной динамики. Для моделирования процесса выхода фотоэлектрона из нанопантены её поверхность была разбита на большое число малых площадок – элементов поверхности. В соответствии с вычисленной конфигурацией полей, на каждом шаге интегрирования по времени по формуле Фаулера–Нордхейма [20] определялась вероятность выхода электрона для каждого элемента поверхности. Далее статистически, при помощи метода Монте–Карло, выбирались точки, из которых с нулевой скоростью начиналось движение новых эмиттированных фотоэлектронов. Интегрирование уравнений движения фотоэлектронов и определение их траекторий проводились параллельно с интегрированием уравнений Максвелла, что позволяло точно определять электрические поля, воздействующие на фотоэлектроны. Столкновения электронов с поверхностью металла нанопантены приближённо рассматривались как чисто упругие. Энергетические спектры строились по принципу гистограммы для набора значений энергии фотоэлектронов после окончания воздействия внешнего лазерного импульса и затухания плазмонных колебаний в нанопантене.

Были рассмотрены три конфигурации вольфрамовых нанопантены типа “галстук-бабочка” с двумя коническими элементами (см. рис. 1): 1) “асимметричные” антенны с различными радиусами кривизны наконечников $r_c = 3$ нм и $R_c = 10$ нм; 2) “симметричные малые” антенны с одинаковыми радиусами кривизны наконечников r_c , соответствующими меньшему из радиусов закругления элементов “асимметричной” антенны; и 3) “симметричные большие” антенны с одинаковыми радиусами кривизны наконечников, равными большему радиусу, R_c . Длины конусов и углы раствора для элементов всех нанопантены были одинаковыми, $l = 100$ нм и $\alpha = 30^\circ$, соответственно. Таким образом, размеры конусов с радиусом закругления R_c оказывались больше, чем размеры конусов с радиусом закругления r_c . Расстояние между наконечниками было выбрано равным $d = 20$ нм. Диэлектрическая функция вольфрама была взята из [21].

Поле плоской волны внешнего лазерного импульса представляло собой импульс с огибающей в виде Гауссовой функции. Излучение линейно поляризовано вдоль оси вра-

щения наноантенн (ось X на рис. 1), длина волны лазерного импульса – 800 нм, длительность (FWHM) – 5 периодов, интенсивность $I = 3 \cdot 10^{11}$ Вт/см². Последнее значение много меньше пороговых величин, приводящих к разрушению вольфрамовых наноострий. Согласно оценкам [9], для длительностей импульса порядка десятков фемтосекунд пороговая напряженность поля вблизи поверхности эквивалентна интенсивности в несколько десятков ТВт/см². Для изучения эмиссии «асимметричной» наноантенны нами были рассмотрены импульсы с двумя значениями фазы лазерного импульса в максимуме его огибающей (carrier-envelope phase, CEP), $\Phi_{\text{CEP}} = 0$ и $\Phi_{\text{CEP}} = \pi$. Зависимости напряжённостей электрических полей для этих значений фазы представлены на рис. 2.

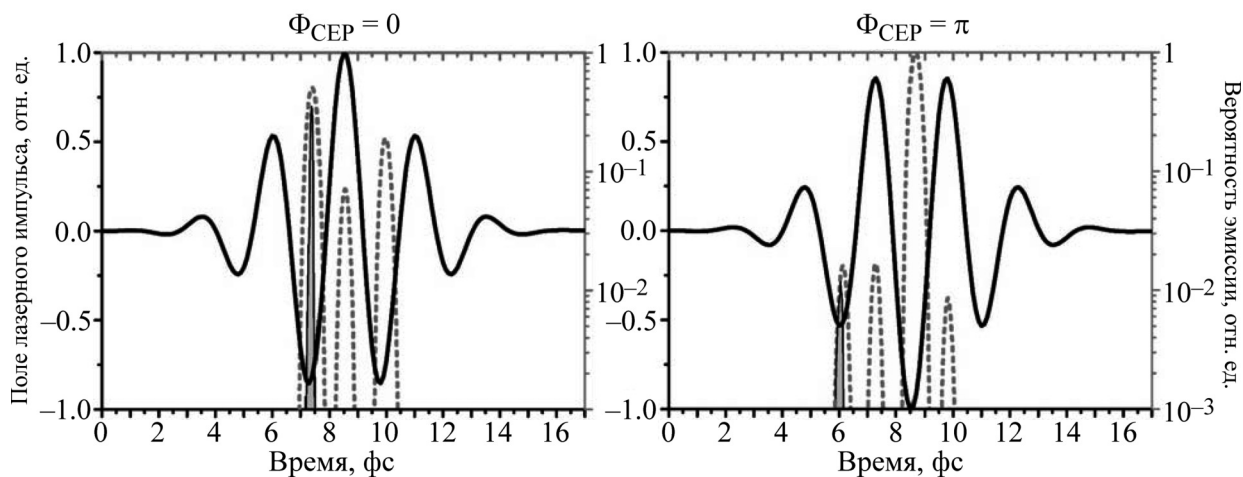


Рис. 2: Зависимости напряжённостей электрического поля во внешнем лазерном импульсе и зависимость вероятности эмиссии из «асимметричной» антенны от времени для фаз $\Phi_{\text{CEP}} = 0$ (слева) и $\Phi_{\text{CEP}} = \pi$ (справа). Сплошная линия – зависимость напряженности внешнего излучения от времени. Серый пунктир – вероятность эмиссии электронов. Закрашенные области соответствуют вероятностям эмиссии электронов, формирующих высокоэнергетическую часть спектра (энергия электрона больше 60% от максимальной энергии в спектре).

Результаты расчетов и обсуждение. На рис. 3 представлены энергетические спектры фотоэлектронов, полученные для случая составной «симметричной малой» наноантенны и отдельно только левого её конуса при двух значениях $\Phi_{\text{CEP}} = 0$ и $\Phi_{\text{CEP}} = \pi$. Как видно, спектры содержат ярко выраженные области «плато», сформированные перерассеянными фотоэлектронами. Данная картина полностью согласуется с типичной картиной спектров надпороговой фотоэмиссии. Верхний порог энергий фотоэлектронов

(границы “плато”) значительно выше для случая составной наноантенны по сравнению со случаем одиночного конуса. Это подтверждает, что в случае составной наноантенны плазмонное усиление позволяет достигнуть большей плотности электромагнитной энергии, чем в случае одиночной наноструктуры.

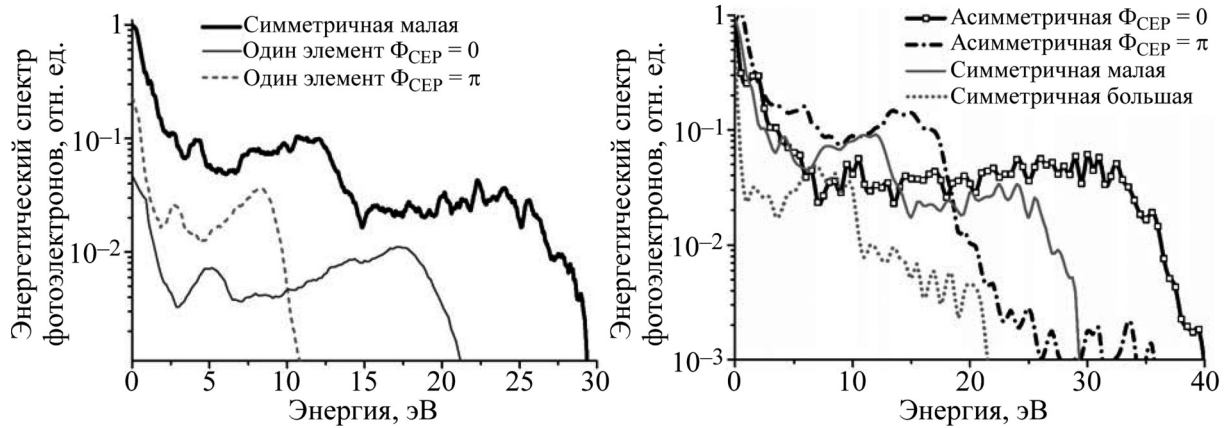


Рис. 3: Энергетические спектры фотоэлектронов, полученные для случая составной “симметричной малой” наноантенны (толстая сплошная линия) и одиночного её элемента (левого конуса) при $\Phi_{\text{СЕР}} = 0$ (тонкая сплошная линия) и $\Phi_{\text{СЕР}} = \pi$ (серый пунктир).

Рис. 4: Энергетические спектры фотоэлектронов, полученные для конфигураций наноантенн, показанных на рис. 1. Черная толстая сплошная линия с открытыми квадратами соответствует случаю “асимметричной” наноантенны при $\Phi_{\text{СЕР}} = 0$; черная толстая линия пунктир-точка соответствует случаю “асимметричной” наноантенны при $\Phi_{\text{СЕР}} = \pi$; серая тонкая сплошная линия соответствует случаю “симметричной малой” наноантенны; серые точки соответствуют случаю “симметричной большой” наноантенны.

Существенная зависимость положения энергетической границы “плато” от фазы лазерного импульса в максимуме его огибающей, $\Phi_{\text{СЕР}}$, для случая одиночного конуса связана с его асимметрией относительно плоскости YZ (см. рис. 1). При $\Phi_{\text{СЕР}} = \pi$ вероятность эмиссии значительно превышает вероятность эмиссии при $\Phi_{\text{СЕР}} = 0$. Однако при $\Phi_{\text{СЕР}} = 0$ верхняя граница энергии “плато” существенно выше, чем при $\Phi_{\text{СЕР}} = \pi$. Обе эти зависимости ранее наблюдались в экспериментах [6, 9]. Первая объясняется экспоненциальным характером зависимости вероятности фотоэмиссии от отрицательного значения напряжённости поля. Это поле с максимальным по модулю отрицательным

значением напряженности возникает в случае импульса с $\Phi_{\text{СЕР}} = \pi$ (см. правый рис. 2, промежуток с 8 до 9 фс). Вторая зависимость связана с особенностью механизма перераспределения, который требует, чтобы после выхода из металла (в момент достаточно большого по модулю отрицательного значения напряженности поля) электрон подвергся воздействию как минимум одного периода внешнего поля высокой интенсивности. Такие условия возникают в случае импульса с $\Phi_{\text{СЕР}} = 0$ (см. левый рис. 2, промежуток с 7 до 10 фс). В случае фотоэмиссии с “симметричной малой” наноантенны энергетический спектр фотоэлектронов не зависит от $\Phi_{\text{СЕР}}$.

Зависимость энергетических спектров фотоэлектронов от конфигурации изучаемых составных наноантенн представлена на рис. 4. Для случая “асимметричной” наноантенны, аналогично случаю одиночного конуса, положение верхней энергетической границы “плато” существенно зависит от фазы лазерного импульса в максимуме его огибающей, $\Phi_{\text{СЕР}}$. При этом, в случае “асимметричной” антенны при $\Phi_{\text{СЕР}} = 0$ эта граница оказывается заметно выше, чем в случаях “симметричных” антенн обоих размеров. Высота “плато” также оказывается больше.

Для выяснения причины более эффективного уширения спектра фотоэлектронов для “асимметричной” антенны при $\Phi_{\text{СЕР}} = 0$ следует обратить внимание на зависимость вероятности выхода электронов от времени для случая “асимметричной” наноантенны, показанную на рис. 2. Разность высот пиков вероятности фотоэмиссии при одинаковых напряженностях поля импульса объясняется влиянием поля плазмонных колебаний наноантенны, которое искажает поле вблизи поверхности металла и изменяет вероятность выхода электрона из него. На рис. 2 также показаны вероятности эмиссии электронов, которые по окончании взаимодействия с лазерным импульсом обладают с наибольшей энергией. Как видно из рисунка, для $\Phi_{\text{СЕР}} = 0$ такие электроны вылетают при отрицательной напряженности поля, что означает, что они испускаются левым (меньшим) коническим элементом наноантенны. Из этого можно сделать вывод, что основной причиной уширения оказывается дополнительное плазмонное усиление напряженности поля, возникающее вблизи малого элемента в присутствии большего правого элемента, по сравнению со случаем двух малых элементов. Это подтверждается данными, приведенными на рис. 5.

Наконец, важно отметить, что наибольшая полная вероятность фотоэмиссии также достигается в случае “асимметричной” антенны, но при $\Phi_{\text{СЕР}} = \pi$. Это объясняется тем, что в этом случае упомянутое выше дополнительное плазмонное усиление поля вблизи левого (малого) элемента дополнительно стимулирует фотоэмиссию из этого элемен-

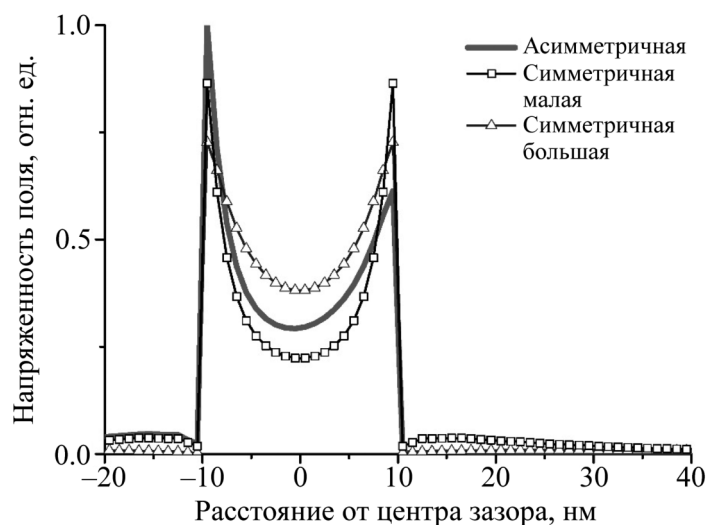


Рис. 5: Зависимость модуля X-компоненты напряженности поля от координаты вдоль оси вращения составных наномантенн (см. рис. 1) в момент первого максимума эмиссии при $\Phi_{\text{СЕР}} = 0$ (см. рис. 2). Черная толстая линия – случай “асимметричной” наномантенны; линия с открытыми квадратами – случай “симметричной малой” наномантенны; линия с открытыми треугольниками – случай “симметричной большой” наномантенны.

та во времена, когда модуль напряженности поля достигает максимума. Электроны, эмиттированные в это время, формируют спектр при малых и средних энергиях.

Заключение. Теоретически исследованы механизмы формирования энергетических спектров фотоэлектронов при надпороговой фотоэмиссии составных наномантенн типа “галстук-бабочка” при взаимодействии с фемтосекундными лазерными импульсами. Изучено влияние размеров элементов наномантенны на вероятность эмиссии и положение верхней границы “плато” в энергетических спектрах фотоэлектронов. Показано, что верхний порог энергий фотоэлектронов (граница “плато”) значительно выше для случая составной наномантенны по сравнению со случаями эмиссии с одиночных элементов-конусов. Установлено, что для случая наномантенны, состоящей из конических элементов разного размера (“асимметричная” антенна), эффективности фотоэмиссии и разгона электрона существенно зависят от фазы лазерного импульса в максимуме его огибающей, $\Phi_{\text{СЕР}}$. Если поляризация импульса излучения в максимуме направлена от малого элемента к большому ($\Phi_{\text{СЕР}} = 0$), то верхняя граница энергии “плато” в спектре фотоэлектронов, эмиттировавших из такой “асимметричной” наномантенны, оказывается значительно выше, чем у составной наномантенны, состоящей из двух элементов

одинакового размера. Показано, что основной причиной такого уширения оказывается дополнительное плазмонное усиление напряженности поля вблизи малого элемента, возникающее при увеличении размеров соседнего элемента.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФ (грант № 14–22–00273).

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] P. Agostini and L. DiMauro, *Rep. Prog. Phys.* **67**, 813 (2004).
- [2] P. Gorcum and F. Krausz, *Nature Phys.* **3**, 381 (2007).
- [3] F. Krausz and M. Ivanov, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 163 (2009).
- [4] R. Kienberger, Z. Chang, and C. H. Nam, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **45**, 070201 (2012).
- [5] M. Schenk, M. Krüger, and P. Hommelhoff, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 257601 (2010).
- [6] M. Krüger, M. Schenk, and P. Hommelhoff, *Nature* **475**, 78 (2011).
- [7] G. Wachter, C. Lemell, J. Burgdörfer, et al., *Phys. Rev. B* **86**, 035402 (2012).
- [8] M. Krüger, M. Schenk, P. Hommelhoff, et al., *New J. Phys.* **14**, 085019 (2012).
- [9] M. Krüger, M. Schenk, M. Förster, and P. Hommelhoff, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **45**, 074006 (2012).
- [10] P. Dombi, A. Hörl, P. Rácz, et al., *Nano Lett.* **13**, 674 (2013).
- [11] F. Süßmann et al., *Nature Commun.* **6**, 7944 (2015).
- [12] P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
- [13] M. Ciappina, J. Pérez-Hernández, T. Shaaran, et al., *Phys. Rev. A* **89**, 013409 (2014).
- [14] M. Ciappina, J. Pérez-Hernández, T. Shaaran, and M. Lewenstein, *Eur. Phys. J. D* **68**, 172 (2014).
- [15] L. Novotny and N. van Hulst, *Nature Photon.* **5**, 83 (2011).
- [16] P. Biagioni, J.-S. Huang, and B. Hecht, *Rep. Prog. Phys.* **75**, 024402 (2012).
- [17] А. Е. Краснок, И. С. Максимов, А. И. Денисюк и др., *УФН* **183**, 561 (2013).
- [18] A. Taflove and S. Hagness, *Computational Electrodynamics: The Finite-Difference Time-Domain Method* (2nd Ed.) ISBN 1-58053-076-1 (Artech House, Boston, 2000).
- [19] <http://ab-initio.mit.edu/wiki/index.php/Meep>.
- [20] R. H. Fowler and Dr. L. Nordheim, *Proceedings of the Royal Society A* **119**, 173 (1928).
- [21] E. D. Palik (Ed.), *Handbook of Optical Constants of Solids II*, ISBN 0-12-5444422-2 (Academic Press, 1991).

Поступила в редакцию 16 июня 2016 г.