

О механизме генерации электромагнитного излучения терагерцевого диапазона, возникающего при облучении наноструктурированной поверхности металла фемтосекундным лазерным импульсом

А.Д.Гладун, В.Г.Лейман, А.В.Арсенин

Предложен механизм генерации когерентного электромагнитного излучения терагерцевого диапазона, наблюдаемого в экспериментах по взаимодействию лазерных импульсов фемтосекундной длительности с наноструктурированной поверхностью металла. В основе этого механизма лежит вынужденное когерентное излучение электронов, эмиттированных поверхностью металла и заполняющих углубления периодической наноструктуры.

Ключевые слова: терагерцевое излучение, фемтосекундный лазерный импульс, аномальный фотоэлектрический эффект.

В последние годы уделяется серьезное внимание поиску новых эффективных методов генерации когерентного электромагнитного излучения терагерцевого диапазона [1–6], что обусловлено, прежде всего, перспективами его возможного широкого практического использования [7]. В данном диапазоне лежат спектры многих важных органических молекул, в том числе белков и ДНК, а также фононные резонансы кристаллических решеток. Это позволяет развивать новые методы спектроскопии биологических и полупроводниковых образцов. С помощью излучения терагерцевого диапазона можно управлять химическими реакциями и манипулировать электронными состояниями в квантовых ямах. Определенные перспективы при использовании этого излучения открываются также и в медицине для терапии и диагностики.

В настоящее время наиболее перспективным направлением поиска методов генерации терагерцевого излучения принято считать исследования различных схем оптического выпрямления, в которых излучение петагерцевого спектрального диапазона преобразуется в излучение терагерцевого диапазона [8, 9].

Использование взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов с электрооптическими и полупроводниковыми средами стало в последнее время наиболее распространенным способом генерации терагерцевого излучения. Пета-терагерцевые преобразователи на основе таких сред сравнительно дешевы, компактны и могут генерировать излучение в диапазоне 0.2–2 ТГц мощностью от нескольких нановатт до сотен микроватт [10]. Относительно малая мощность и малый коэффициент преобразования по энергии таких источников дают основания для поиска более эффективных схем преобразования петагерцевого излучения в терагерцевое.

В данной статье рассматривается механизм генерации когерентного терагерцевого излучения, специфика которого в первую очередь обусловлена возбуждаемой фемтосекундным лазерным импульсом эмиссией электронов с наноструктурированной поверхности металла [4]. Эта эмиссия может быть как термоэмиссией, возникающей вследствие неравновесных процессов в металле при воздействии достаточно коротких импульсов [11], так и исследуемой в последнее время аномальной фотоэмиссией [12–14], обусловленной значительным усилением поля поверхностными плазмон-поляритонами.

Суть механизма генерации поясним на простейшей модели. Пусть имеется бесконечная периодическая структура (решетка) с периодом Λ , состоящая из одинаковых точечных диполей с моментами $\mathbf{p}_n(t)$, расположенных вдоль оси z (рис.1). Выражение для вектора \mathbf{P} поляризации структуры можно при этом записать в виде

$$\mathbf{P} = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \mathbf{p}_n(t) \delta(z - n\Lambda) \delta(y), \quad \frac{\partial}{\partial x} = 0.$$

Рассмотрим излучение этой системы на больших расстояниях (в волновой зоне). Угол θ на рис.1 характеризует направление на точку наблюдения. Введем поляризационный потенциал

$$\Pi = \int_V \frac{\mathbf{P}(\mathbf{r}', t - r/c)}{r} d\mathbf{r}',$$

где \mathbf{r}' – радиус-вектор, характеризующий положение диполя; r – модуль радиуса-вектора, проведенного из диполя в точку наблюдения. Потенциалы электромагнитного поля φ и \mathbf{A} определяются при этом соотношениями

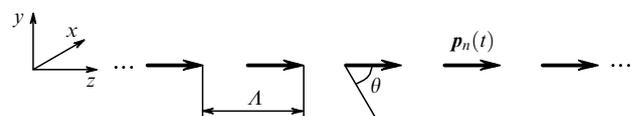


Рис.1. Периодическая структура, состоящая из точечных диполей (одномерное представление решетки с периодом Λ).

А.Д.Гладун, В.Г.Лейман, А.В.Арсенин. Московский физико-технический институт (государственный университет), Россия, Московская обл., 141700 Долгопрудный, Институтский пер., 9; e-mail: arsenin@gephys.mipt.ru

$$\varphi = -\operatorname{div} \mathbf{\Pi}, \quad A = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{\Pi}}{\partial t}.$$

Вектор $\mathbf{\Pi}$ удовлетворяет волновому уравнению

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathbf{\Pi} = -4\pi \mathbf{P}.$$

Для рассматриваемой излучающей системы

$$\mathbf{\Pi} = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{1}{r_n} \mathbf{p}_n \left(t - \frac{r_n}{c} \right) = \frac{1}{r_n} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \mathbf{p}_n \left(t - \frac{r_n}{c} \right), \quad (1)$$

где r_n – модуль радиуса-вектора, проведенного из n -го диполя в точку наблюдения. Последнее равенство в (1) оправданно, поскольку на больших расстояниях от периодической структуры величину $1/r_n$ можно рассматривать как медленно меняющуюся. В декартовой системе координат \mathbf{p}_n имеет компоненты $\{0, 0, p\}$. Считаем, что

$$p = p_0 \exp[i(\omega t + k_g \xi)], \quad (2)$$

где p_0 – амплитуда; k_g – модуль волнового вектора волны в решетке; $\xi = n\Lambda$ ($n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$). Это означает, что в решетке распространяется дипольная волна, длина которой $\lambda_g = 2\pi/k_g$. Подставляя (2) в (1), находим

$$\begin{aligned} \mathbf{\Pi} &= \frac{p_0 \exp[i\omega(t - r/c)]}{r} \\ &\times \sum_{n=-\infty}^{\infty} \exp \left[-in\Lambda \left(\frac{\omega}{c} \cos \theta + k_g \right) \right]. \end{aligned} \quad (3)$$

Мы учли здесь, что $r_n = r - \xi \cos \theta$.

Если длина волны излучения $\lambda = 2\pi c/\omega \gg \Lambda$, то суммирование в (3) правомерно заменить интегрированием, т. е. в этом случае можно ввести физически бесконечно малый интервал $\Delta \xi$, который удовлетворяет условию

$$\lambda \gg \Delta \xi \gg \Lambda, \quad \Delta n = \frac{\Delta \xi}{\Lambda},$$

где Δn – число диполей в этом интервале. Заменяя в (3) суммирование интегрированием, имеем

$$\begin{aligned} \mathbf{\Pi} &= \frac{p_0 \exp[i\omega(t - r/c)]}{r} \frac{1}{\Lambda} \\ &\times \int_{-\infty}^{\infty} \exp \left[-i \left(\frac{\omega}{c} \cos \theta + k_g \right) \xi \right] d\xi \\ &= \frac{p_0 \exp[i\omega(t - r/c)]}{r} \frac{2\pi}{\Lambda} \delta \left(\frac{\omega}{c} \cos \theta + k_g \right), \end{aligned} \quad (4)$$

откуда

$$\frac{\omega}{c} \cos \theta = -k_g. \quad (5)$$

Из соотношения (5) следует, что $\cos \theta < 0$ и $\omega/k_g = c/\cos \theta$, т. е. фазовая скорость дипольной волны больше скорости света в вакууме.

Рассмотрим теперь излучение решетки длиной l в волновой зоне. Поле излучения каждого элемента длиной $\Delta \xi \ll \lambda$ можно представить в виде суммы полей каждого отдельного диполя без учета сдвига фаз излучения. Поля точечного диполя в волновой зоне даются следую-

щими формулами (в сферической системе координат r, φ, θ):

$$\begin{aligned} \mathbf{\Pi} &= \frac{p_0 \exp[i\omega(t - r/c)]}{r}, \\ B_\varphi &= \frac{(i\omega)^2}{c^2} \sin \theta \frac{p(t - r/c)}{r} = \frac{\sin \theta}{c^2 r} \frac{\partial^2}{\partial t^2} p(t - r/c), \\ E_\theta &= \frac{(i\omega)^2}{c^2} \sin \theta \frac{p(t - r/c)}{r} = \frac{\sin \theta}{c^2 r} \frac{\partial^2}{\partial t^2} p(t - r/c), \\ B_r = B_\theta = E_r = E_\varphi &= 0, \end{aligned} \quad (6)$$

где B_r, B_φ, B_θ – радиальная, азимутальная и полярная составляющие вектора магнитной индукции; E_r, E_φ, E_θ – радиальная, азимутальная и полярная составляющие вектора напряженности электрического поля. В соответствии с (6) суммарное поле совокупности Δn диполей на длине $\Delta \xi = \Lambda \Delta n$ есть

$$dE_\theta = dB_\varphi = -\frac{\sin \theta}{rc^2} \frac{d^2 p}{dt^2} \frac{1}{\Lambda} d\xi = \omega^2 \frac{\sin \theta}{rc^2} p_0(\xi) \exp(i\omega t) \frac{1}{\Lambda} d\xi,$$

где $p_0(\xi)$ – амплитуда диполя в поле стоячей волны как функция координаты. Интегрируя по всем элементам вдоль решетки с учетом запаздывания ($t \rightarrow t - r/c$), имеем

$$E_\theta = B_\varphi = \frac{\omega^2}{c^2} \exp(i\omega t) \int_{-l/2}^{l/2} p_0(\xi) \frac{\sin \theta}{r} \exp \left(-i \frac{\omega}{c} r \right) \frac{d\xi}{\Lambda}. \quad (7)$$

Поскольку наблюдение ведется далеко от решетки, при вычислении (7) можно вынести из-под знака интеграла величину $\sin \theta/r$, а также сделать замену $r = r_0 - \xi \cos \theta$, где r_0 – расстояние от середины решетки до точки наблюдения. В результате получаем

$$\begin{aligned} E_\theta = B_\varphi &= \frac{\omega^2 \exp[i\omega(t - r_0/c)]}{c^2} \frac{\sin \theta}{r_0} \\ &\times \int_{-l/2}^{l/2} p_0(\xi) \exp \left(-i \frac{\omega}{c} \xi \cos \theta \right) \frac{d\xi}{\Lambda}. \end{aligned} \quad (8)$$

Примем следующие граничные условия:

$$I(\xi)|_{\xi=\pm l/2} = 0, \quad (9)$$

где $I(\xi) = dp/dt = i\omega p_0(\xi)$. Условию (9) можно удовлетворить, полагая, что

$$I(\xi) = \begin{cases} i\omega p_0 \sin \frac{\pi s}{l} \xi & \text{при четном } s, \\ i\omega p_0 \cos \frac{\pi m}{l} \xi & \text{при нечетном } m. \end{cases}$$

Интегралы в (8) легко вычисляются:

$$\begin{aligned} &\int_{-l/2}^{l/2} \sin \frac{\pi s}{l} \xi \exp \left(-i \frac{\omega}{c} \xi \cos \theta \right) d\xi \\ &= \frac{4\pi s/l}{(\pi s/l)^2 - [(\omega/c) \cos \theta]^2} \sin \left(\frac{\omega}{2c} l \cos \theta \right), \end{aligned}$$

$$\int_{-l/2}^{l/2} \cos \frac{\pi m}{l} \xi \exp \left(-i \frac{\omega}{c} \xi \cos \theta \right) d\xi$$

$$= \frac{4\pi m/l}{(\pi m/l)^2 - [(\omega/c) \cos \theta]^2} \cos \left(\frac{\omega}{2c} l \cos \theta \right).$$

Окончательно при четном s получаем

$$E_\theta = B_\varphi = \omega^2 p_0 \frac{\exp[i\omega(t - r_0/c)] \sin \theta}{c^2 r_0 A}$$

$$\times \frac{\pi s/l}{(\pi s/l)^2 - [(\omega/c) \cos \theta]^2} \sin \left(\frac{\omega}{2c} l \cos \theta \right). \quad (10)$$

При нечетном m получается аналогичное выражение, только с заменой $\sin[(\omega/2c)l \cos \theta]$ на $\cos[(\omega/2c)l \cos \theta]$.

Таким образом, мы видим, что, в отличие от случая излучения диполя, в выражениях для полей излучения линейки диполей появляется дополнительная зависимость от углов, определяющаяся типом дипольных колебаний, длиной решетки и дисперсионным уравнением дипольных волн, связывающих ω и $k_g = \pi s/l$.

В соответствии с (10) плотность потока излучаемой энергии (модуль вектора Пойнтинга)

$$S = \frac{\omega^4 p_0^2 \sin^2 \theta}{4\pi c^3 r_0^2} \left(\frac{l}{A} \right)^2$$

$$\times \frac{\sin^2[(kl/2) \cos \theta]}{(\pi s)^2 \{1 - [(k/k_g) \cos \theta]^2\}^2} \cos^2(\omega t - kr_0). \quad (11)$$

Здесь $k = 2\pi/\lambda$; $k_g = \pi s/l$; s – четное число. Количество энергии, излучаемой решеткой в единицу времени в элемент телесного угла $d\Omega$, есть

$$dW = S r_0^2 d\Omega,$$

где $d\Omega = 2\pi \sin \theta d\theta$. Если угол наблюдения удовлетворяет условию

$$\pm \frac{1}{2} kl \cos \theta = \frac{\pi}{2},$$

т. е. $\cos \theta = \pm \lambda/(2l)$, то для $s = 2$, $A = 500$ нм, $\lambda = 0.3$ мм ($\nu \approx 1$ ТГц) и $l = \lambda = 0.3$ мм, получим $\theta = \pm 60^\circ$ и $l/A = 600$. Это означает, что вектор Пойнтинга (11) для излучения решетки превышает таковой для излучения диполя примерно в $(l/A)^2 = 3.6 \times 10^5$ раз.

В заключение возникает естественный вопрос о том, каким образом можно создавать излучающую дипольную волну на наноструктурированной поверхности металла, не являющуюся поверхностным плазмон-поляритоном (последний, как известно, не излучает). Это можно осуществить с помощью сверхкороткого лазерного импульса, который не только возбуждает плазмон-поляритонную волну, но и вызывает эмиссию электронов, колеблющихся в поле этой волны. Приведем аргументы в пользу этого утверждения.

Оптические и кинетические свойства большинства благородных металлов в широком диапазоне температур определяются в значительной степени столкновениями электронов с фононами, которые характеризуются эффективными частотами столкновений ν_{ep} , превышающими частоты электрон-электронных столкновений ν_{ee} . Иная ситуация возникает, когда металл взаимодействует

с достаточно мощным фемтосекундным лазерным импульсом. При поглощении лазерного импульса электроны быстро нагреваются до температуры, значительно большей температуры решетки, которая остается во время действия импульса почти неизменной. Уже при температуре электронов, превышающей две-три тысячи кельвинов, реализуется условие $\nu_{ee} \gg \nu_{ep}$. При этом как поглощение энергии лазерного импульса, так и вынос тепла из скин-слоя определяются в основном электрон-электронными столкновениями [11, 15].

Можно предположить, что при воздействии лазерного импульса на наноструктурированную поверхность металла происходит сильный нагрев электронов, приводящий к их эмиссии. В качестве другой причины эмиссии электронов можно назвать аномальный фотоэффект [12–14], в основе которого лежит явление многократного усиления поля на поверхности металла вследствие возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов. Попадая в углубления решетки, свободные электроны совершают колебательные движения под действием, например, поля стоячей волны длинноволнового плазмона, возбужденного в наноструктуре лазерным импульсом. Когерентно колеблющиеся в периодически расположенных углублениях электроны и образуют излучающую периодическую структуру диполей.

Таким образом, в настоящей работе показано, что электроны, эмитированные наноструктурированной поверхностью металла в результате воздействия фемтосекундного лазерного импульса, играют роль антенны, излучающей энергию терагерцевых плазмонов, возбужденных тем же импульсом. Это открывает новые возможности как для интерпретации результатов экспериментальных исследований, так и для создания новых импульсных источников излучения терагерцевого диапазона.

Авторы выражают благодарность А.П.Канавину за полезные обсуждения работы.

Работа выполнена при финансовой поддержке Федерального агентства по образованию РФ (грант РНП. 2.1.1.6089), гранта МК-4082.2007.2 Президента РФ и гранта РФФИ № 05-01-00790.

1. Carr G.L., Martin M.C., McKinney W.R., Jordan K., Neil G.R., Williams G.P. *Nature*, **420**, 153 (2002).
2. Beaufort E., Turner G.M., Harrel S.M., Beard M.C., Bigot J.-Y., Schmuttenmaer C.A. *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 3465 (2004).
3. Bakunov M.I., Maslov A.V., Vodrov S.B. *Phys. Rev. B*, **72**, 195336 (2005).
4. Welsh G.H., Hunt N.T., Wynne K. *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 026803 (2007).
5. Wu H.-C., Sheng Z.-M., Dong Q.-L., Xu H., Zhang J. *Phys. Rev. E*, **75**, 016407 (2007).
6. Kim D.S., Citrin D.S. *J. Appl. Phys.*, **101**, 053105 (2007).
7. Siegel P.H. *IEEE Trans. Microwave Theory Techn.*, **50**, 910 (2002).
8. Auston D.H., Cheung K.P., Valdmanis J.A., Kleinman D.A. *Phys. Rev. Lett.*, **53**, 1555 (1984).
9. Xu L., Zhang X.-C., Auston D.H. *Appl. Phys. Lett.*, **61**, 1784 (1992).
10. Gallerano G.P., Biedron S. *Proc. Conf. on FEL'2004* (Italy, Trieste, 2004, p. 216).
11. Fujimoto J.G., Liu J.M., Ippen E.P., Bloembergen N. *Phys. Rev. Lett.*, **53**, 1837 (1984).
12. Zawadzka J., Jaroszynski D., Carey J.J., Wynne K. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A*, **445**, 324 (2000).
13. Irvine S.E., Dechant A., Elezzabi A.Y. *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 184801 (2004).
14. Kupersztich J., Raynaud M. *Phys. Rev. Lett.*, **95**, 147401 (2005).
15. Исаков В.А., Канавин А.П., Урюпин С.А. *Квантовая электроника*, **36**, 928 (2006).