

ВЛИЯНИЕ ПРИПОВЕРХНОСТНОГО ЭЛЕКТРОННОГО СЛОЯ НА ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ СПЕКТР ФОТОЭЛЕКТРОНОВ

*М. А. Яковлев**

*Московский государственный технический университет им. Н. Э. Баумана
107005, Москва, Россия*

М. В. Федоров

*Институт общей физики Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 6 мая 2002 г.

Определено влияние самосогласованного электрического поля приповерхностного электронного слоя на энергетический спектр фотоэлектронов при воздействии пикосекундного лазерного импульса на металлическую мишень.

PACS: 52.40.Hf, 79.40.-z, 79.60.-i

1. ВВЕДЕНИЕ

Экспериментальные исследования энергетического спектра фотоэлектронов, возникающих при воздействии пикосекундных лазерных импульсов на металлическую мишень, выявили наличие фотоэлектронов с неожиданно высокой энергией — вплоть до 600 эВ [1]. Проведенные до этого аналогичные исследования с использованием наносекундных лазерных импульсов с той же энергией в импульсе и длиной волны излучения не обнаружили фотоэлектронов с энергией, превышающей 10 эВ [2].

Первоначальные теоретические объяснения связывали появление «быстрых» фотоэлектронов с влиянием приповерхностного электронного облака, образующегося при воздействии лазерного излучения на поверхность металла [1, 3]. Однако в этих работах не был разработан механизм образования приповерхностного электронного облака и не определены его физические свойства. В частности, не были определены условия, накладываемые на параметры лазерного излучения (интенсивность и длительность лазерного импульса), при которых образующийся электронный слой может заметно влиять на приповерхностные процессы. Соответственно, полученные теоретические результаты носили чисто ка-

чественный характер и не смогли дать убедительного объяснения эффекта появления «быстрых» электронов.

В более поздней теоретической работе [4] появление «быстрых» электронов связывалось не с влиянием электронного облака, а с приповерхностной поляризацией электронов металлического проводника под действием скользящего лазерного излучения. Основной тезис работы [4] заключается в том, что при прохождении скользящего лазерного луча с соответствующей поляризацией вдоль металлической поверхности устанавливается режим фазовой когерентности между лазерным электрическим полем и колебаниями приповерхностных электронов внутри металла. При этом необходимым условием выполнения режима фазовой когерентности является требование малости температуры электронов при прохождении излучения (температура электронов порядка температуры решетки, т. е. 300 К).

Следует, однако, заметить, что условие фазовой когерентности в реальных экспериментах с пикосекундными лазерными импульсами не может быть выполнено. Действительно, даже в случае скользящего вдоль металлической поверхности луча Nd-лазера (в реальном эксперименте около 5° [1]) нельзя пренебречь нагреванием электронов внутри металла в слое, имеющем толщину порядка длины

*E-mail: yakovlev@mx.bmstu.ru

волны лазерного излучения ($\lambda = 1.06 \cdot 10^{-4}$ см, т. е. глубина прогрева порядка 10^4 слоев решетки). При этом отрыв температуры электронов от температуры решетки для пикосекундного Nd-лазерного импульса с интенсивностью $I \sim 10^{10}$ Вт/см² достигает значений около 10^5 К [5], что приводит к нарушению условия фазовой когерентности.

В нашей работе появление «быстрых» фотоэлектронов при пикосекундном лазерном воздействии на металлическую мишень связывается с воздействием электрического поля, образующегося при соответствующих условиях в приповерхностном электронном слое [6], на отдельные фотоэлектроны.

2. ПРИПОВЕРХНОСТНЫЙ ЭЛЕКТРОННЫЙ СЛОЙ

Основной причиной формирования приповерхностного электронного слоя при воздействии ультракоротких лазерных импульсов на металлическую мишень является значительный отрыв температуры электронной компоненты от температуры решетки (порядка 1 эВ) [5]. Это приводит к резкому увеличению термоэмиссионного тока и образованию вблизи поверхности достаточно протяженной области объемного отрицательного заряда.

Как известно, двойной электрический слой существует вблизи поверхности металла и в условиях термодинамического равновесия между электронной и решеточной подсистемами. В этом случае электронный газ является вырожденным и электронная концентрация убывает по мере удаления от поверхности очень быстро,

$$n_e \propto z^{-2} \exp(-\beta z),$$

где β^{-1} — величина порядка среднего межэлектронного расстояния в металле [7]. Это дает возможность считать приповерхностный слой вырожденных электронов сколь угодно тонким и пренебречь его влиянием на проникновение лазерного излучения в металл. Однако по мере быстрого уменьшения концентрации степень вырождения падает, и когда энергия Ферми $E_F(n_e)$ становится порядка kT , электроны переходят в классическое состояние. Дальнейшее уменьшение электронной концентрации происходит по существенно более плавному закону [6]:

$$n_e(z) = n_0 \left(1 + \frac{z}{\sqrt{2}L_D} \right)^{-2}, \quad (1)$$

где

$$L_D = (\varepsilon_0 kT / e^2 n_0)^{1/2}$$

— длина дебаевского экранирования, n_0 — граничная концентрация, определяемая из условия вырождения

$$E_F(n_0) \approx kT,$$

т. е.

$$n_0 \propto T^{3/2}.$$

Таким образом, с ростом электронной температуры увеличивается размер области приповерхностного электронного слоя, где концентрация убывает в соответствии с (1). Вместе с тем растет и граничное значение концентрации n_0 , и при достижении температур порядка E_F все электроны приповерхностного электронного слоя переходят в классическое состояние. При этом их распределение подчиняется (1), а n_0 становится порядка электронной концентрации в металле. Следовательно, при интенсивном неравновесном нагреве электронной компоненты металла вблизи его поверхности может формироваться достаточно протяженный слой электронов, имеющих высокую концентрацию.

Формирование с помощью ультракоротких лазерных импульсов приповерхностного электронного слоя с соответствующими электрофизическими характеристиками, при которых он может оказывать существенное влияние на происходящие вблизи поверхности процессы, возможно в ограниченных интервалах изменения интенсивностей I_{em} и длительностей τ_p лазерных импульсов:

$$I_{em}^{min} \leq I_{em} \leq I_{em}^{max}, \quad \tau_p^{min} \leq \tau_p \leq \tau_p^{max}.$$

Минимальное значение граничной интенсивности I_{em}^{min} определяется из условия достижения за время импульса достаточно эффективного отрыва температуры электронной компоненты T_e от температуры решетки T_l :

$$\Delta T = T_e - T_l \approx T_F \sim 10^4 - 10^5 \text{ К},$$

где T_F — температура вырождения электронной подсистемы, а именно (см. [8]),

$$I_{em}^{min} \approx \alpha_l l \Delta T,$$

где $\alpha_l \sim 10^{10}$ Вт/см³·К — скорость обмена энергией между электронной и решеточной подсистемами, l — глубина прогреваемого слоя внутри металла за время импульса, $l \sim \max[\delta, \sqrt{\chi \tau_p}]$ (δ — глубина скин-слоя, χ — электронная температуропроводность). В случае пикосекундного импульса $l \sim 10^{-5}$ см, т. е. $I_{em}^{min} \sim 10^9$ Вт/см².

Согласно [5], при воздействии на поверхности характерных металлов пикосекундных лазерных импульсов с интенсивностью $I_{em} \sim 3 \cdot 10^9$ Вт/см² два

конкурирующих процесса выхода электронов с металлической поверхности — термоэмиссия и фотоэмиссия — имеют один и тот же порядок величины, поэтому в данной области можно ожидать наиболее заметного влияния коллективного процесса термоэмиссии на одночастичный процесс фотоэмиссии. С ростом интенсивности излучения термоэмиссия начинает преобладать над фотоэмиссией, т. е. при указанных интенсивностях формирование приповерхностного электронного слоя происходит благодаря термоэмиссии за время

$$\tau_s \approx L_D/v_T \sim 10^{-14}-10^{-13} \text{ с.}$$

Здесь v_T — тепловая скорость электронов [6]. Кроме того, надо отметить, что характер термоэмиссии в этом случае существенно отличается от термоэмиссии с электрода в замкнутой цепи, поскольку в рассматриваемом случае термоэмиссия происходит с изолированной металлической поверхности, на которой остается нескомпенсированный положительный заряд, а вблизи поверхности формируется отрицательный объемный заряд, что в свою очередь оказывает влияние на термоэмиссионный ток. Все это сильно усложняет возможность описания процесса формирования приповерхностного электронного слоя. Однако, поскольку время формирования пространственного распределения τ_s много меньше длительности пикосекундного лазерного импульса τ_p , фактически в течение всего импульса пространственное распределение приповерхностного электронного слоя можно считать стационарным с соответствующей температурой слоя.

Верхняя граница интенсивности I_{em}^{max} соответствует предпороговой области начала процессов плавления и абляции материала мишени, которые могут возникнуть в случае, если накопленная в электронной подсистеме в результате воздействия ультракороткого лазерного импульса плотность энергии превысит определенный порог:

$$I_{em}^{max} \tau_p \leq F_{abl},$$

где пороговая плотность энергии лазерной абляции $F_{abl} \approx 0.2-0.5 \text{ Дж/см}^2$ [9, 10], т. е. при длительности импульса $\tau_p \sim 1 \text{ пс}$ имеем $I_{em}^{max} \sim 10^{12} \text{ Вт/см}^2$.

Ограничения на длительность лазерного импульса τ_p определяются из следующих условий:

$$\tau_p^{min} \geq \tau_s,$$

где $\tau_s \sim 10^{-13} \text{ с}$ — время формирования приповерхностного электронного слоя с невырожденной электронной компонентой, и

$$\tau_p^{max} \leq \tau_{el},$$

где τ_{el} — характерное время передачи энергии от электронов к решетке. Последнее условие гарантирует, что за время лазерного импульса решетка не нагревается и не успевает возникнуть режим развитого испарения материала мишени, при котором роль приповерхностного электронного слоя становится малозначительной.

Таким образом, из полученных результатов следует, что приповерхностный электронный слой может оказывать существенное влияние на приповерхностные процессы в ограниченных, но достаточно важных для технологических применений интервалах изменения интенсивностей и длительностей лазерных импульсов, а именно, $10^{10} \text{ Вт/см}^2 \leq I_{em} \leq 10^{12} \text{ Вт/см}^2$ и $10^{-13} \leq \tau_p \leq 10^{-11} \text{ с}$.

3. ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ СПЕКТР «БЫСТРЫХ» ФОТОЭЛЕКТРОНОВ В ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ ПРИПОВЕРХНОСТНОГО ЭЛЕКТРОННОГО СЛОЯ

Для нахождения самосогласованного электрического поля приповерхностного электронного слоя E_z , создаваемого положительным зарядом проводника и электронами при облучении поверхности пикосекундным лазерным импульсом, аналогично [11] решалась система уравнений, описывающая изменение со временем температуры электронной компоненты и процесс формирования этого слоя. Однако, в отличие от [11], при рассматриваемых давлениях (порядка 1 атм) и интенсивностях пикосекундного лазерного импульса ($\sim 10^{10} \text{ Вт/см}^2$) можно пренебречь ионизацией нейтрального газа.

Перейдем к системе уравнений, описывающих процесс формирования приповерхностного электронного слоя вблизи поверхности конденсированного вещества. Вначале рассмотрим уравнение теплопроводности. В области $z < 0$ (проводящее конденсированное вещество) имеем

$$C_m \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left[\chi_m \frac{\partial T_e}{\partial z} \right] - \alpha(T_e - T_l) + q(z, t). \quad (2)$$

Здесь C_m и χ_m — теплоемкость и теплопроводность проводящего конденсированного вещества, α — коэффициент теплообмена электронов с решеткой, который практически не зависит от электронной температуры [12]:

$$\alpha = \frac{\pi^2}{6} \frac{m c_s^2 \nu_{eff} n_m}{T_l},$$

где $\nu_{eff} = \nu_{eff}(T_l)$, c_s — скорость звука в проводящем конденсированном веществе. Для типичных металлов, где $n_m \sim 10^{22} \text{ см}^{-3}$, коэффициент $\alpha \sim 10^{10} \text{ Вт/см}^3 \cdot \text{К}$. Для теплоемкости и теплопроводности проводящего конденсированного вещества были использованы следующие асимптотические выражения [12]:

$$C_m = \begin{cases} \frac{\pi^2}{2} n_m k \left(\frac{kT_e}{E_F} \right), & kT_e \ll E_F, \\ \frac{3}{2} n_m k, & kT_e \geq E_F, \end{cases}$$

$$\chi_m = \begin{cases} \chi_{m0} \frac{T_e}{T_l}, & kT_e \ll E_F, \\ \frac{1}{2} n_m k \frac{\bar{v}_e^2}{\nu_{eff}}, & kT_e \geq E_F, \end{cases}$$

где \bar{v}_e — средняя тепловая скорость электронов, χ_{m0} — равновесный коэффициент теплопроводности проводящего конденсированного вещества при начальной температуре T_0 . Выражение для функции объемного энерговыделения $q(z, t)$ имеет вид

$$q(z, t) = \kappa_r \kappa_i k_0 \varepsilon_0 c |E_0|^2 \exp(2k_0 \kappa_i z),$$

где κ_r и κ_i — коэффициенты преломления проводящего конденсированного вещества, E_0 — амплитуда поля волны при $z = 0$.

Уравнение теплопроводности в газе ($z > 0$) имеет вид

$$\frac{3}{2} k \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{n_e} \frac{\partial}{\partial z} \left[\chi_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right] - \frac{3m}{M} k (T_e - T_a) \nu_e + \frac{e^2 |E|^2 \nu_e}{2m(\omega^2 + \nu_e^2)}, \quad (3)$$

где M — атомная масса газа (в единицах m), $\nu_e = \sigma_a n_a \bar{v}_e$ — частота электронных столкновений в газе, а $\sigma_a = \sigma_a(\bar{v}_e)$ — транспортное сечение рассеяния электрона на атоме. Для инертных газов зависимость $\sigma_a(\bar{v}_e)$ хорошо известна. В расчетах были использованы данные работы [13].

Уравнения, описывающие изменение температуры решетки T_l , а также тяжелой газовой компоненты (атомов) T_a имеют вид

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = \alpha (T_e - T_l),$$

$$\frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{2m}{M} \frac{n_e}{n_a} \nu_{ea} (T_e - T_a),$$

где C_l — теплоемкость решетки:

$$C_l \approx 3n_l k.$$

Как следует из приведенных уравнений, поскольку по условиям задачи рассматриваются очень быстрые процессы ($t \ll \tau_l \sim 10^{-10} \text{ с}$), температура решетки и тяжелой газовой компоненты на данном временном промежутке будет меняться весьма слабо. Например, даже при средней электронной температуре $T_e \sim 10 \text{ эВ}$ к моменту времени $t \sim 10^{-13} \text{ с}$ температура решетки изменится на величину порядка 10^2 К . По этой причине в расчетах было положено, что $T_l = T_a = T_0$.

Граничные условия для уравнений (2) и (3) имеют вид

$$\frac{\partial T_e}{\partial z} = 0, \quad z = -l_m, l_a,$$

$$\left[\chi \frac{\partial T_e}{\partial z} \right] = 0, \quad z = 0, \quad (4)$$

где l_m, l_a — границы рассматриваемой области в проводящем конденсированном веществе и газе (формально $l_m, l_a \rightarrow \infty$).

Перейдем теперь к остальным уравнениям, описывающим кинетику образования приповерхностного электронного слоя. Уравнение непрерывности для электронной концентрации должно решаться совместно с уравнениями Максвелла в областях $z < 0$ и $z > 0$. Однако, вместо того чтобы решать уравнение непрерывности во всем пространстве, достаточно рассмотреть область $z > 0$, задав в точке $z = 0$ граничное условие, соответствующее полученным ранее распределениям (1) электронов приповерхностного электронного слоя в зависимости от температуры:

$$n_e|_{z=0} = n_0,$$

где n_0 — граничная концентрация приповерхностного электронного слоя в данный момент времени (заметим, что при температуре $T \geq 4\text{--}5 \text{ эВ}$ электроны приповерхностного электронного слоя образуют идеальную кулоновскую систему). Профиль концентрации приповерхностного электронного слоя вблизи поверхности будет успевать отслеживать изменение температуры, так как характерное время установления этого слоя порядка ω_p^{-1} .

Рассмотрим уравнение непрерывности электронной компоненты:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left[D_e \frac{\partial n_e}{\partial z} + \mu_e E_z n_e \right], \quad (5)$$

где D_e и μ_e — коэффициенты диффузии и подвижности, определяемые следующим образом:

$$\mu_e = \frac{e}{m_e \nu_e}, \quad D_e = \frac{\bar{v}_e^2}{3\nu_e}.$$

Таблица 1.

$I_{em}^{(1)} = 0.3 \cdot 10^{10}$ Вт/см ²	$I_{em}^{(2)} = 10^{10}$ Вт/см ²	$I_{em}^{(3)} = 3 \cdot 10^{10}$ Вт/см ²
$T_1 = 4.6 \cdot 10^4$ К	$T_2 = 7.5 \cdot 10^4$ К	$T_3 = 11.3 \cdot 10^4$ К
$n_0^{(1)} = 3.8 \cdot 10^{17}$ см ⁻³	$n_0^{(2)} = 2.2 \cdot 10^{19}$ см ⁻³	$n_0^{(3)} = 6 \cdot 10^{19}$ см ⁻³
$E_1 = 1.3 \cdot 10^7$ В/см	$E_2 = 1.6 \cdot 10^7$ В/см	$E_3 = 1.8 \cdot 10^7$ В/см

Граничные условия для уравнения (5) имеют вид

$$z = 0 : \quad n_e = n_0,$$

$$z = l_a : \quad D_e \frac{\partial n_e}{\partial z} + \mu_e E_z n_e = 0. \tag{6}$$

Начальное условие для n_e соответствует распределению электронов приповерхностного слоя при начальной температуре T_0 . Распределение продольного электрического поля E_z находится из уравнения

$$\frac{\partial E_z}{\partial z} = -\frac{e n_e}{\epsilon_0}, \tag{7}$$

которому на каждом временном шаге соответствует граничное условие

$$E_z|_{z=0} = \frac{e}{\epsilon_0} \int_0^{l_a} n_e dz.$$

Результаты численного расчета электрофизических параметров приповерхностного электронного слоя вблизи поверхности металлической мишени в зависимости от интенсивности пикосекундного лазерного импульса, поляризованного вдоль поверхности мишени, приведены в табл. 1 ($T_{1,2,3}$ и n_0 — температура и концентрация электронов, $E_{1,2,3}$ — само согласованное электрическое поле в приповерхностном электронном слое, имеющее направление, перпендикулярное поверхности мишени). На основании данных, приведенных в табл. 1, и с учетом кулоновского характера столкновений электронов приповерхностного электронного слоя, можно определить длину свободного пробега электрона L_s и накопленную при этом энергию W_e . Результаты приведены в табл. 2.

При определении энергии, набираемой отдельным фотоэлектроном в электрическом поле приповерхностного электронного слоя, надо учесть особенность пространственного профиля слоя в направлении, перпендикулярном поверхности проводника

Таблица 2.

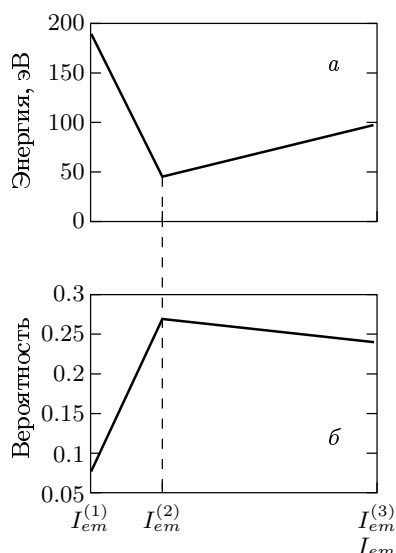
$L_s^1 = 2.2 \cdot 10^{-5}$ см	$L_s^2 = 10^{-6}$ см	$L_s^3 = 8.5 \cdot 10^{-7}$ см
$W_e^1 = 191$ эВ	$W_e^2 = 46$ эВ	$W_e^3 = 98$ эВ

(ось z). Распределение концентрации приповерхностных термоэлектронов можно условно разбить на две основные области — пристеночная область (область 1) размером порядка длины Дебая L_d . В этой области сосредоточена основная часть электронов приповерхностного слоя. Следует, однако, отметить, что в рассматриваемом случае плоской симметрии электрическое поле внутри этого слоя убывает достаточно медленно. Согласно (1), (7), электрическое поле E_z уменьшается обратно пропорционально z с масштабом L_D . Таким образом, электрическое поле от положительно заряженной поверхности проводника проходит плоский дебаевский слой с незначительным уменьшением (примерно в 2 раза) и попадает в относительно разреженную область вне дебаевского слоя с характерным размером порядка нескольких длин свободного пробега L_s (в рассматриваемых условиях $L_D < L_s$) — область 2. Таким образом, отдельный фотоэлектрон может набрать значительную энергию в области 2 вдоль линии электрического поля на длине свободного пробега и, упруго отразившись от области 1 с изменением направления скорости, выйти из пристеночной области под малым углом к поверхности проводника с полным запасом набранной энергии. Вероятность такого элементарного акта можно оценить как L_D/L_s .

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Из сравнения результатов численного расчета с реальными экспериментами [1, 2] можно сделать следующие выводы.

1. Отсутствие «быстрых» фотоэлектронов при воздействии наносекундных Nd-лазерных импульсов ($\tau_p = 27$ нс) с энергией в импульсе $W_p =$



Максимальная энергия «быстрых» фотоэлектронов (*a*) и вероятность появления электронов с данной энергией (*б*) в зависимости от интенсивности пикосекундного лазерного импульса ($I_{em}^{(1)} = 0.3 \cdot 10^{10}$ Вт/см², $I_{em}^{(2)} = 1.1 \cdot 10^{10}$ Вт/см², $I_{em}^{(3)} = 3 \cdot 10^{10}$ Вт/см²

= 0.05 Дж [2] можно объяснить тем фактом, что при этих условиях не формируется приповерхностный электронный слой и, соответственно, отсутствует электрическое поле, способное «разогреть» фотоэлектроны до значительных энергий.

2. Из экспериментов по воздействию пикосекундных Nd-лазерных импульсов ($\tau_p = 8$ пс) с интенсивностью от $1.3 \cdot 10^{10}$ Вт/см² до $2.5 \cdot 10^{10}$ Вт/см² был установлен следующий интервал максимальных значений энергий фотоэлектронов: от 100 эВ до 600 эВ [1]. Эти экспериментальные данные достаточно хорошо объясняются численным расчетом влияния на отдельные фотоэлектроны электрического поля приповерхностного электронного слоя, образующегося при указанных параметрах лазерного излучения, что хорошо видно из рисунка.

Авторы благодарны А. А. Рухадзе за интерес к работе и поддержку.

ЛИТЕРАТУРА

1. G. Farkas and C. Toth, Phys. Rev. A **41**, 4123 (1990).
2. E. M. Logothetis and P. L. Hartman, Phys. Rev. **187**, 460 (1969).
3. G. Petite, P. Agostini et al., Phys. Rev. B **45**, 12210 (1992).
4. S. Varro and F. Ehlotzky, Phys. Rev. A **57**, 663 (1998).
5. С. И. Анисимов, Б. Л. Капелиович, Т. Л. Перельман, ЖЭТФ **66**, 776 (1974).
6. А. В. Ивлев, К. Б. Павлов, М. А. Яковлев, ЖТФ **64**, 50 (1994).
7. A. K. Gupta and K. S. Singwi, Phys. Rev. B **15**, 1801 (1977).
8. С. И. Анисимов, Б. Ретфельд, Изв. АН, сер. физ. **61**, 1642 (1997).
9. Ю. В. Афанасьев, Н. Н. Демченко, И. Н. Завестковская и др., Изв. АН, сер. физ. **63**, 667 (1999).
10. D. Riley, A. J. Langley, P. F. Taday et al., J. Phys. D: Appl. Phys. **31**, 515 (1998).
11. А. В. Ивлев, М. А. Яковлев, А. Н. Борденюк, ЖТФ **68**, 42 (1998).
12. S. I. Anisimov, B. I. Makshantsev, and A. V. Barsukov, Opt. and Acoust. Rev. **1**, 251 (1990).
13. L. J. Kieffer, Atom Data **2**(4), 293 (1971).