

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ им. М.В.
ЛОМОНОСОВА

НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ
ФИЗИКИ им. Д.В. СКОБЕЛЬЦЫНА

**А.Н. Бельский, А.Н. Васильев, Б.Н. Яценко, Н. Bachau, P. Martin,
G. Geoffroy, S. Guizard, G. Petite**

**Нагрев электронов в зоне проводимости кристалла CsI
под действием мощных фемтосекундных лазерных
импульсов**

Препринт НИИЯФ МГУ- 2003-8/721

**А. Н. Бельский, А. Н. Васильев, Б.Н. Яценко, Н. Bachau, P.
Martin, G. Geoffroy, S. Guizard, G. Petite**

**Нагрев электронов в зоне проводимости кристалла
CsI под действием мощных фемтосекундных
лазерных импульсов**

Препринт НИИЯФ МГУ- 2003-8/721

УДК 535.37
ББК.....

A. Belsky, A. Vasil'ev, B.Yatsenko, H. Bachau, P. Martin, G. Geoffroy, S. Guizard, G. Petite

Electron Heating in CsI Conduction Band under Intense Femtosecond Laser Pulses

e-mail: dd_boris@rambler.ru

Institute of Nuclear Physics preprint 2003-8/721

CsI photoelectron spectra induced by 40 fs laser pulses with intensity of $5 \times 10^{11} - 3 \times 10^{12}$ W/cm² are presented. High-energy region of photoelectron spectra is characterized by the plateau, the width of which increases with excitation intensity. This plateau has exponential cut-off; e.g., at 3×10^{12} W/cm² the plateau is extended up to 27 eV, and 90% of emitted electrons have energy above 3.5 eV. This feature could hardly be explained only in terms of either free-electron models, or models of electron heating in crystals due to electron-photon-phonon scattering. An alternative model of electron heating is proposed. The main feature of the proposed model is the account for direct inter-branch electron transitions in conduction band of insulator under intense laser radiation.

А.Н. Бельский, А.Н. Васильев, Б.Н. Яценко, Н. Bachau, P. Martin, G. Geoffroy, S. Guizard, G. Petite

Нагрев электронов в зоне проводимости кристалла CsI под действием мощных фемтосекундных лазерных импульсов

e-mail: dd_boris@rambler.ru

Препринт НИИЯФ МГУ- 2003-8/721

В работе представлены фотоэлектронные спектры CsI, индуцированные лазерными импульсами с пиковой интенсивностью $5 \times 10^{11} - 3 \times 10^{12}$ Вт/см² и длительностью 40 фс. При повышении интенсивности возбуждения в спектре появляется и расширяется плато высокоэнергетичных электронов, которое имеет экспоненциальный обрыв. При интенсивности 3×10^{12} Вт/см² конец плато имеет энергию 27 эВ, полный электронный выход при этом возбуждении на 90% определяется электронами с энергией выше 3.5 эВ. Эти спектры не могут быть описаны только в рамках модели нагрева электронов в кристалле за счет электрон-фотон-фонноного взаимодействия. Предложена альтернативная модель нагрева электронов, базирующаяся на учете прямых межветвевых переходов электронов в зоне проводимости диэлектрического кристалла (без участия третьих частиц) под действием мощного лазерного излучения, которая учитывает многоветвевую электронную структуру зоны проводимости.

© НИИЯФ МГУ, 2003

Взаимодействие мощного лазерного излучения с атомами приводит к созданию горячих электронов с энергией, многократно превышающей порог ионизации (эффект надпороговой ионизации) [1] и к генерации ВУФ гармоник [2]. Разработаны детальные теории этих процессов, основы которых были заложены Келдышем [3]. Взаимодействие мощного лазерного излучения с твердым телом, в частности, с диэлектрическими кристаллами, исследовано значительно меньше. В этих исследованиях, основной интерес уделялся сверхмощным полям (соответствующим интенсивности $>10^{15}$ Вт/см²), которые разрушают твердое тело с созданием плазмы (энергия импульсов при этом значительно больше, чем необходимо для оптического пробоя), и относительно слабым полям (соответствующим интенсивности $<10^8$ Вт/см²), приводящим к двух- трехфотонному поглощению в кристалле. Взаимодействие лазерного излучения промежуточной интенсивности с диэлектриками изучено слабо, по сравнению с этими областями, хотя именно возбуждение такой интенсивности может приводить к сильным нелинейным эффектам, но при этом не разрушать твердое тело.

Изучение фундаментальных процессов, происходящих в широкозонных диэлектриках под действием мощного лазерного излучения важно для понимания таких явлений, как радиационное образование дефектов и оптический пробой [4,15,16]. Большое число экспериментальных и теоретических работ выполнено для кварца [4-7,14-16], поскольку этот материал имеет большое прикладное значение и достаточно хорошо изучен.

В этих работах основным механизмом, приводящим к нагреву электронов в зоне проводимости, считается механизм электрон-фотон-фононных рассеяний, описываемый в приближении эффективной массы. Привлечение этого механизма связано с тем, что в предположении параболического закона дисперсии, электрон не может поглотить фотон, не нарушая закон сохранения энергии или закон сохранения импульса. Этот запрет может быть снят, если в акте поглощения электроном фотона участвует фонон. Модель электрон-фотон-

фононного нагрева была использована для моделирования спектров фотоэлектронов, вылетающих из кристалла SiO_2 под воздействием пикосекундных и субпикосекундных лазерных импульсов с интенсивностью до 5×10^{11} Вт/см², в диапазоне 1-8 эВ [6,7].

Содержание этой работы определялось двумя факторами. С одной стороны, к настоящему моменту нет каких либо экспериментальных данных о спектрах фотоэлектронов, возбуждаемых лазерными импульсами с большей, чем в работах [6,7], интенсивностью. Несмотря на то, что наблюдались фотоэлектроны с энергиями до 30 эВ при фотоэмиссии SiO_2 под действием импульсов с интенсивностями 10^{12} – 10^{13} Вт/см² [8,14], к сожалению, энергетическое распределение электронов в этих экспериментах не было исследовано. Также отсутствуют экспериментальные данные для других диэлектрических кристаллов, в частности, кристаллов с меньшей энергией оптических фононов, чем у SiO_2 . С другой стороны, существенным ограничением обсуждаемых выше моделей, является то, что использованное в них приближение эффективной массы, корректно только для электронов с кинетической энергией, не превышающей нескольких эВ (что соответствует энергии электронов на краю первой зоны Бриллюэна).

Наши эксперименты были выполнены с использованием Ti-Sa лазера (длина волны 800 нм) в лаборатории CELIA [9] с максимальной энергией импульсов 20 мДж и минимальной длительностью 20 фс. Пучок разделялся между двумя основными экспериментальными линиями: линией ИК излучения и линией генерации гармоник высокого порядка. Часть лазерного пучка второй линии использовалась для прямого возбуждения кристалла. Пучок ИК излучения фокусировался на образце таким образом, что интенсивность излучения в центре пятна составляла приблизительно 3×10^{12} Вт/см² при энергии импульса 100 мкДж. Излучение лазера падало под углом 45° на поверхность образца, расположенного в высоковакуумной камере (5×10^{-9} торр). Детектирование фотоэлектронов нормально к поверхности осуществлялось

полусферическим электронным анализатором (CLAM 4, VG Microtech) с 9 детекторами, функционирующими в режиме счета электронов (таким образом, детектор мог регистрировать только один электрон за импульс). Это обеспечивало максимальную скорость счета до 5×10^3 при частоте лазерных импульсов 1 кГц и давало возможность измерять выход электронов с динамическим диапазоном не более трех порядков. Для расширения динамического экспериментального диапазона до 10^5 , измерения спектров фотоэмиссии были выполнены при двух напряжениях на детекторе, при этом его чувствительность изменялась примерно в 100 раз.

Фотоэлектронные спектры диэлектриков могут искажаться дополнительным электростатическим потенциалом положительного заряда на поверхности кристалла, обусловленного фотоэмиссией. Поверхностный заряд приводит к торможению фотоэлектронов, которое пропорционально величине заряда. Для компенсации этого поверхностного заряда в наших экспериментах использовалось нагревание кристалла до 200°C , которое приводило к увеличению скорости поверхностной и объемной диффузии дырок, накапливающихся в облучаемой области поверхности.

Здесь также следует упомянуть эффект электростатического отталкивания из-за пространственного заряда электронов в вакууме. Эффект отталкивания искажает фотоэлектронный спектр и удлиняет импульс фотоэлектронов. Этот эффект хорошо известен в ускорительной технике и был подробно исследован для случая возбуждения интенсивными фемтосекундными лазерными импульсами. Как следует из этих исследований, при использованных нами экспериментальных параметрах, им можно пренебречь.

Спектры фотоэлектронов, получаемых при облучении кристалла CsI лазерными импульсами с длиной волны 800 нм, длительностью 40 фс и интенсивностью $0,5\text{--}3 \text{ ТВт/см}^2$, представлены на рис. 1. Следует подчеркнуть,

что в кристалле CsI ширина запрещенной зоны E_g равна 6 эВ, а энергия оптических фононов в 6 раз меньше, чем у SiO_2 .

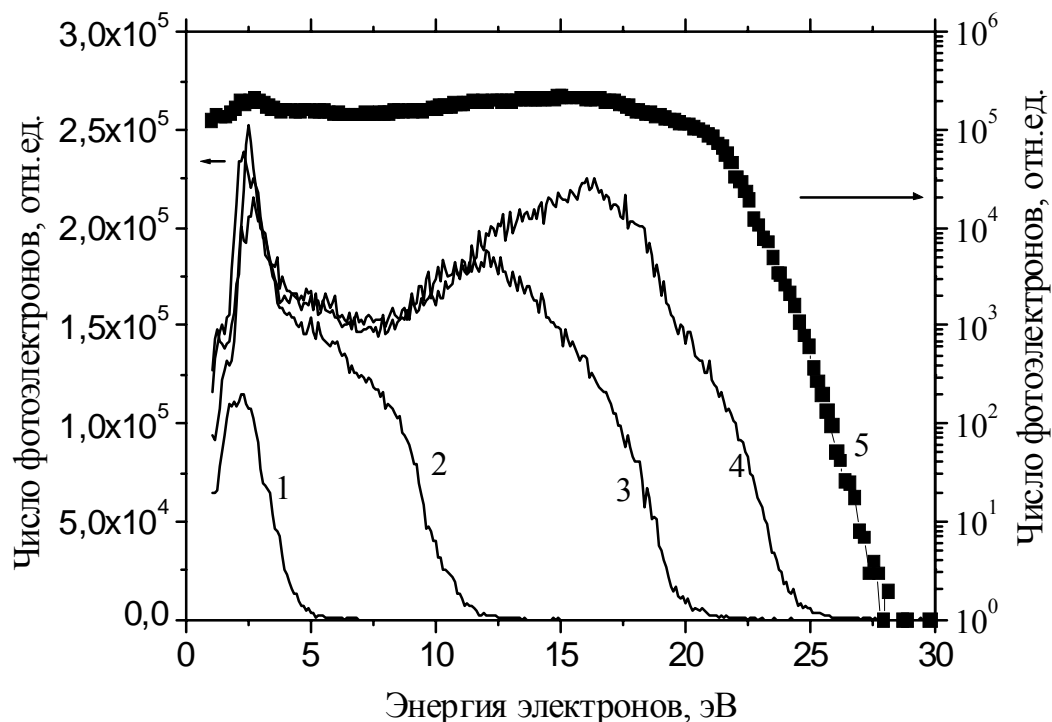


Рис. 1 Спектры фотоэмиссии CsI, индуцированной фемтосекунтными лазерными импульсами 800 нм с энергией: 1 – 20 мкДж, 2 – 40 мкДж, 3 - 80 мкДж, 4, 5 - 100 мкДж. Спектры 1-4 изображены в линейной шкале, спектр 5 показан в логарифмической шкале. Энергия импульсов равная 100 мкДж соответствует пиковой интенсивности равной 3×10^{12} Вт/см².

Спектры состоят из достаточно резкой структуры (ширина полос около 1-2 эВ), расположенной в низкоэнергетической (LE) части спектра и широкого плато электронов высокой энергии (HE), интенсивность которого близка к интенсивности в LE части. При возбуждении импульсами с энергией 3 ТВт/см² энергия отсечки (начало экспоненциального спада) составляет около 24 эВ, а максимальная энергия электронов достигает 30 эВ.

Естественно начать обсуждение наших результатов со сравнения с фотоэлектронными спектрами атомов, возбуждаемых интенсивными

лазерными полями. Простой квазиклассический подход (аналогичный тому, который был использован для случая генерации гармоник высокого порядка в газах [17]), учитывающий только пондеромоторный эффект [13], показывает, что максимальная кинетическая энергия электронов может быть оценена, как $\varepsilon_{\max} = 8U_p$. Здесь $U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2}$ - пондеромоторная энергия в лазерном поле E с частотой ω , e – заряд электрона, а m – масса электрона. Таким образом, энергия ε_{\max} составляет менее 3 эВ для интенсивностей излучения, не превышающих 10^{13} Вт/см², то есть ε_{\max} много меньше, чем максимальная энергия электронов, наблюдаемая в наших экспериментах. Плато в высокоэнергетичной части спектра типично для эффекта надпороговой ионизации в атомах [10]. Но плато в фотоэлектронном спектре надпороговой ионизации инертных газов наблюдалось при возбуждении короткими лазерными импульсами с пиковой интенсивностью, по крайней мере, в 10 раз большей, чем в наших экспериментах. Поэтому мы предположили, что для объяснения наблюдаемого эффекта необходимо учитывать процессы, определяемые твердым телом, в котором происходит нагрев электрона.

Рассмотрим две области спектра фотоэлектронов в рамках существующих моделей нагрева полем электронов твердого тела [5-7]. Следуя работе [6], в низкоэнергетической части спектра можно выделить две полосы. Первую из них (она проявляется как плечо в начале спектра) естественно приписать электронам, заброшенным в зону проводимости, но не испытавшим дальнейшего нагрева до вылета из кристалла. Переход этих электронов из валентной зоны в зону проводимости возможен по одному из известных механизмов: туннельный переход, многофотонное поглощение или ионизация заряженного дефекта [3]. Электроны сразу после ионизации будут преимущественно находиться вблизи дна зоны проводимости, поскольку вероятность многофотонной ионизации быстро падает с числом поглощаемых фотонов. Несмотря на это, в фотоэлектронном спектре наблюдается отсечка

при низких энергиях. Причина этой отсечки следующая: электрон может вылететь из образца только в случае, если его энергия превышает работу выхода, кроме того, он может быть детектирован, только если вылетает под относительно малым углом к нормали поверхности кристалла, определяемому размерами детектора и расстоянием от детектора до поверхности кристалла. Поэтому мы наблюдаем лишь незначительную часть этих низкоэнергетичных электронов.

Вторая полоса в низкоэнергетической части спектра ($E_{\max} \sim 2.5$ эВ) может быть, в соответствии с [6], интерпретирована, как результат поглощения электроном, уже находящимся в зоне проводимости, одного фотона за счет электрон-фотон-фононного рассеяния. Поскольку скорость этого рассеяния пропорциональна лазерной интенсивности, относительная высота второго пика по сравнению с первым увеличивается с ростом интенсивности волны.

С ростом интенсивности лазерного импульса удлиняется высокоэнергетический хвост электронного распределения. К сожалению, нельзя описать эту высокоэнергетическую область в терминах электрон-фотон-фононных столкновений. Поскольку скорость электрон-фотон-фононных рассеяний не достаточно высока, число электронов, поглотивших $n > 1$ фотонов, быстро уменьшается с ростом числа n , что предполагает спадающий профиль спектра, начиная уже с 3 эВ. Как видно из рис.1, наблюдаемый профиль спектра другой по сравнению с тем, который мог бы получаться только за счет электрон-фотон-фононного нагрева [6]. С ростом энергии в спектре появляется континуум высокоэнергетичных электронов, имеющий широкое плато, амплитуда которого близка к амплитуде полосы 2.5 эВ. Окончательно, учитывая, что характерное время электрон-фононного взаимодействия в CsI (оно может быть оценено как $\sim 15-20$ фс, используя стандартную формулу для времени рассеяния электронов на LO фононах [19]) близко к длительности лазерных импульсов (40 фс), мы заключаем, что плато в

спектре фотоэлектронов не может быть приписано только нагреву за счет электрон-фотон-фононных рассеяний.

Существенным отличием фотоэлектронных спектров твердых тел от атомных состоит в том, что наблюдаемый спектр есть результат конкуренции процессов, нагревающих электроны и процессов, ведущим к потере энергии электронами (электрон-электронное и электрон-фононное рассеяния). Поэтому фотоэлектронный спектр формируется из вкладов как первичных, так и вторичных электронов. Вторичные электронно-дырочные пары и экситоны образуются электронами с энергией, превышающей порог сильно неупругих электрон-электронных рассеяний, который примерно равен удвоенному значению ширины запрещенной зоны. Эти электроны будут вносить свой вклад преимущественно в низкоэнергетическую часть спектра. Процесс неупругого электрон-электронного рассеяния ведет к уменьшению числа высокоэнергетичных электронов из-за гибели электронов с большой энергией, ведущей к образованию низкоэнергетичных возбуждений.

Если нагрев электронов в низкоэнергетической части спектра может быть хотя бы качественно описан моделью, учитывающей только электрон-фотон-фононный механизм, то описание его высокоэнергетической части требует рассмотрения альтернативного механизма, который обеспечит поглощение электроном в зоне проводимости 5-20 фотонов при возбуждении кристалла импульсом с интенсивностью 10^{12} - 10^{13} Вт/см² и длительностью 40 фс. Как следует из экспериментальных данных, представленных на рис.2 (см. также [6]), электроны с относительно большой энергией (>3.5 эВ, эта энергия приблизительно соответствует энергии электрона в зоне проводимости, поглотившего два фотона после ионизации) практически не наблюдаются в фотоэлектронном спектре при возбуждении диэлектрических кристаллов лазерными импульсами с интенсивностью менее, чем 5×10^{11} Вт/см². В тоже время, при возбуждении импульсами с интенсивностями превышающими 10^{12} Вт/см², вклад таких относительно высокоэнергетичных электронов в общий

электронный выход резко возрастает. Электрон-фотон-фононный механизм нагрева не успевает за время импульса нагреть электрон до таких энергий. Поэтому для объяснения фотоэлектронных спектров, получаемых при возбуждении относительно большими интенсивностями лазерного излучения (большими, чем 10^{12} Вт/см²), необходимо привлечение альтернативного механизма нагрева.

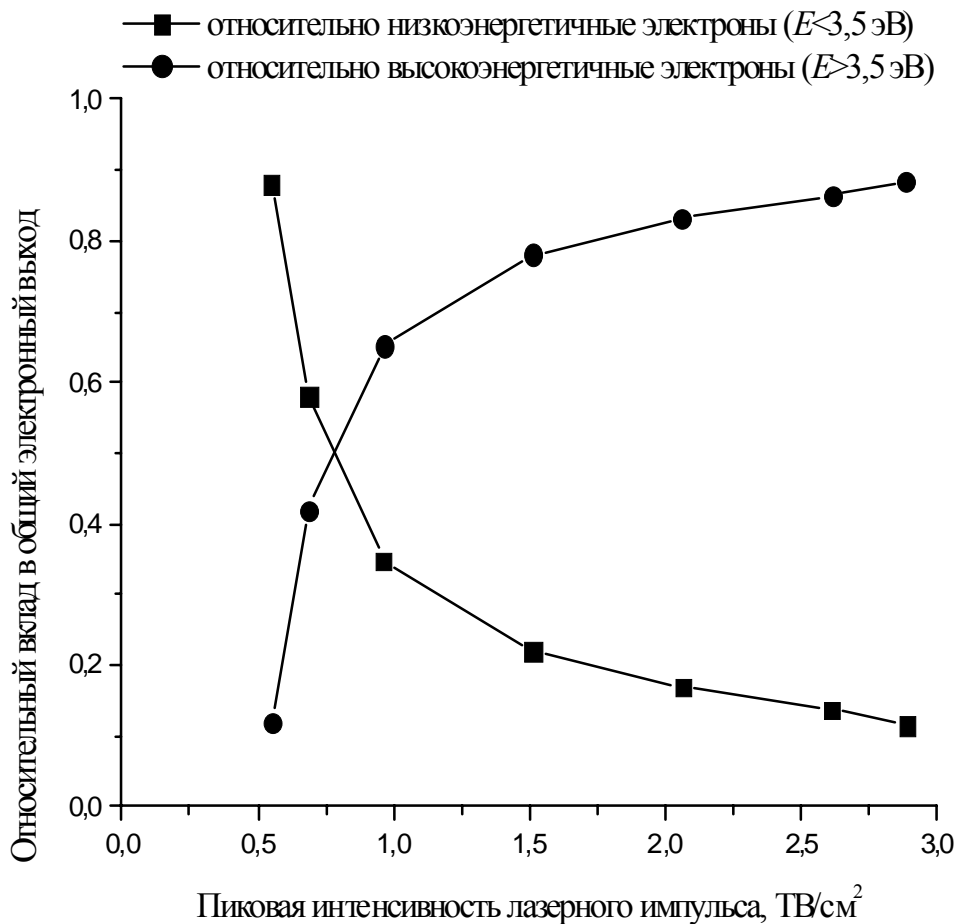


Рис. 2. Зависимость относительного вклада низкоэнергетичных (первые два пика, $E < 3.5$ эВ) и высокоэнергетичных (континуум, $E > 3.5$ эВ) электронов в общий электронный выход от энергии лазерного импульса. Относительные вклады были посчитаны как интегралы экспериментальных кривых по соответствующим областям энергии.

Ниже мы предлагаем модель этого альтернативного механизма нагрева электронов, который так же, как электрон-фотон-фононный механизм, является

универсальным для всех диэлектрических кристаллов. Основная идея модели, описывающей этот механизм, состоит в учете прямых межветвевых переходов электронов в зоне проводимости под действием лазерного поля. Такие переходы наблюдаются, например, при возбуждении ионизирующим излучением диэлектриков, как сверхбыстрая люминесценция [11]. Аналитическое рассмотрение этой модели можно провести, используя модель многопараболического закона дисперсии электронов в зоне проводимости [12].

Рассмотрим процесс перехода электрона с одной ветви дисперсионной кривой на другую ветвь в зоне проводимости кристалла под действием периодического электромагнитного поля в приближении почти свободных электронов. Будем считать, что электрическое поле изменяется во времени гармоническим образом:

$$\mathbf{F}(t) = F \cos(\omega t), \quad (1)$$

эффективный квазиимпульс электрона в таком поле меняется во времени также гармонически:

$$\mathbf{p}(t) = \mathbf{p} + \frac{e\mathbf{F}}{\omega} \sin(\omega t), \quad (2)$$

где \mathbf{p} квазиимпульс без поля.

В этом случае вероятность (в единицу времени и в единице объема) перехода электрона с одной ветви (с индексом 1) на другую (с индексом 2) будет определяться следующей формулой [3]:

$$W = \frac{2\pi}{\hbar} \int \frac{d^3 p}{(2\pi\hbar)^3} |L_{21}(\mathbf{p})|^2 \sum_n \delta(\bar{\varepsilon}(\mathbf{p}; F) - n\hbar\omega) \quad (3)$$

где $\bar{\varepsilon}(\mathbf{p}; F) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} \varepsilon\left(\mathbf{p} + \frac{e\mathbf{F}}{\omega} \sin x\right) dx$ - разность энергий электронов,

находящихся на первой и второй ветви, усредненная по фазе поля, $\varepsilon(\mathbf{p}) = \varepsilon_2(\mathbf{p}) - \varepsilon_1(\mathbf{p})$. Функция $L_{21}(\mathbf{p})$ будет определяться следующим образом:

$$L_{21}(\mathbf{p}) = \frac{1}{2\pi c} \oint V_{21}\left(\mathbf{p} + \frac{e\mathbf{F}}{\omega} u\right) \exp\left\{\frac{i}{\hbar\omega_0} \int \varepsilon\left(\mathbf{p} + \frac{e\mathbf{F}}{\omega} v\right) \frac{dv}{(1-v^2)^{1/2}}\right\} du, \quad (4)$$

где контур C – контур интегрирования, включающий отрезок $(-1;1)$; $V_{21}(\mathbf{p})$ – матричный элемент оптического перехода с 1-й ветви на 2-ю [3]. Для простоты здесь и далее будем считать, что он равен некоторой постоянной величине V_0 , умноженной на корень из интенсивности волны I ($I \sim F^2$), то есть $V_{21}(\mathbf{p}) = V_0 \sqrt{I}$.

В нулевом приближении по взаимодействию электронов с полем кристалла, закон дисперсии энергии электронов в зоне проводимости представляется в виде набора параболических ветвей, минимумы которых соответствуют центру первой зоны Бриллюэна и всем остальным эквивалентным точкам в схеме расширенных зон Бриллюэна [12]:

$$\varepsilon_i(\mathbf{p}) = \frac{(\mathbf{p} - \mathbf{p}_i)^2}{2m} \quad (5)$$

где ε_i – энергия электрона, находящегося на i -й дисперсионной кривой; \mathbf{p} – квазиимпульс электрона; m – масса электрона; $\mathbf{p}_i = \hbar \mathbf{G}$, где $\mathbf{G} = n_1 \mathbf{b}_1 + n_2 \mathbf{b}_2 + n_3 \mathbf{b}_3$ – векторы обратной решетки, определяемые набором целых чисел $i = \{n_1, n_2, n_3\}$ и базисными векторами обратной решетки $\{\mathbf{b}_1, \mathbf{b}_2, \mathbf{b}_3\}$. Таким образом, мы можем получить следующее выражение для разности энергий электронов, находящихся на первой (нижней) ветви и второй (ближайшей вышележащей) ветвях:

$$\varepsilon(\mathbf{p}) = -\frac{2\mathbf{p}(\mathbf{p}_2 - \mathbf{p}_1) + (p_1^2 - p_2^2)}{2m}. \quad (6)$$

Для этой модели оказывается, что $\bar{\varepsilon}(\mathbf{p}; \mathbf{F}) = \varepsilon(\mathbf{p})$, то есть разность энергий электронов, находящихся на первой и второй ветвях, усредненная по фазе поля, не зависит от величины напряженности электрического поля \mathbf{F} . Здесь важно заметить, что зависимость разности энергий $\varepsilon(\mathbf{p})$ от квазиимпульса линейная (а не квадратичная), поскольку мы выбрали параболический закон дисперсии (5) с одинаковыми эффективными массами для всех ветвей. Более сложный закон дисперсии (например, параболический закон с неодинаковыми эффективными

массами для разных ветвей) ведет к более сложной зависимости $\varepsilon(\mathbf{p})$ и приводит также к зависимости $\bar{\varepsilon}$ от электрического поля F .

Вычисляя функцию $L_{21}(\mathbf{p})$, получим следующее выражение:

$$L_{21}(\mathbf{p}) = \frac{V_0 \sqrt{I}}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} \text{Exp}\{i[A_1 \xi - B_1(1 - \cos \xi)]\} \cos \xi d\xi \quad (7),$$

где $A_1 = \frac{\varepsilon(\mathbf{p})}{\hbar \omega}$; $B_1 = \frac{1}{\hbar \omega} \frac{eF(\mathbf{p}_2 - \mathbf{p}_1)}{\omega m}$. Параметр A_1 может принимать только

целые значения, равные n из-за наличия δ -функции в выражении для скорости электронных переходов (3). Из уравнения (7) можно получить следующее выражение:

$$|L_{21}(n, \mathbf{F})|^2 = \frac{V_0^2 I}{4} (J_{n-1}(B_1) - J_{n+1}(B_1))^2 = V_0^2 I (J'_n(B_1))^2, \quad (8)$$

где $J_n(x)$ – функции Бесселя.

Рассмотрим электронные переходы с первой ветви на вторую внутри 1-й зоны Бриллюэна ($p_x \in \left[-\frac{\pi \hbar}{a}; \frac{\pi \hbar}{a}\right]$). В этом случае $\mathbf{p}_1 = \mathbf{0}$; $\mathbf{p}_2 = \frac{2\pi \hbar}{a} \mathbf{i}_x$, где a – период решетки, а \mathbf{i}_x – единичный вектор, направленный вдоль оси x . Для дальнейших применений полезно вычислить зависимость вероятности переходов в единицу времени $W(\varepsilon)$ от энергии электрона:

$$W(\varepsilon) = \frac{V (2\pi \hbar)^{-3}}{g(\varepsilon)} \int_{\Omega} d^3 p \frac{2\pi}{\hbar} |L_{21}(n, \mathbf{F})|^2 \sum_n \delta(\bar{\varepsilon}(\mathbf{p}) - n \hbar \omega) \delta\left(\varepsilon - \frac{p^2}{2m}\right). \quad (9)$$

В этой формуле $g(\varepsilon) = \frac{V}{(2\pi \hbar)^3} \int_{\Omega} d^3 p \delta\left(\varepsilon - \frac{p^2}{2m}\right)$ – плотность состояний, Ω – область в пространстве квазиимпульса, соответствующая 1-й зоне Бриллюэна, а V – объем кристалла.

Для параболического закона дисперсии плотность состояний равна

$$g(\varepsilon) = \frac{V}{4\pi^2 \hbar^3} (2m)^{3/2} \sqrt{\varepsilon} \quad (\text{не учитывая вырождение по спину}).$$

Вычисление

интеграла в формуле (9) приводит к следующей зависимости вероятности переходов в единицу времени от энергии электронов:

$$W(\varepsilon) = \sum_n W_n(\varepsilon) = \frac{a}{\hbar^2} \sqrt{\frac{m}{8\varepsilon}} \sum_{n=1}^{[\tilde{n}]} \Theta(\varepsilon - \varepsilon_n) |L_{21}(n, F_x)|^2. \quad (10)$$

Здесь $\Theta(z)$ – функция Хевисайта; $\varepsilon_n = \varepsilon_0 \left(1 - \frac{n}{\tilde{n}}\right)^2$, где $\tilde{n} = \frac{4\varepsilon_0}{\hbar\omega}$, а $\varepsilon_0 = \frac{1}{2m} \left(\frac{\pi\hbar}{a}\right)^2$

- энергия на краю зоны Бриллюена для направления (001); F_x – проекция вектора напряженности электрического поля \mathbf{F} на ось x . Для параметров, соответствующих кристаллу CsI, $\tilde{n} = 4.65$.

В анализе, который был проведен выше, рассматривались переходы с 1-й ветви (которой соответствует $\mathbf{p}_1 = \mathbf{0}$) на вторую ветвь (которой соответствует

$\mathbf{p}_2 = \frac{2\pi\hbar}{a} \mathbf{i}_x$). Учет других симметричных ветвей (6 ветвей, соответствующих

$\mathbf{p}_2 = \pm \frac{2\pi\hbar}{a} \mathbf{i}_{x,y,z}$ для случая кубической решетки) приводит к окончательной

формуле для скорости электронных переходов:

$$W(\varepsilon) = \frac{a}{\hbar^2} \sqrt{\frac{m}{8\varepsilon}} \sum_{n=1}^{[\tilde{n}]} \Theta(\varepsilon - \varepsilon_n) \left(2|L_{21}(n, F_x)|^2 + 2|L_{21}(n, F_y)|^2 + 2|L_{21}(n, F_z)|^2 \right). \quad (11)$$

Таким образом, с ростом энергии электрона вероятность перехода 1-2 будет изменяться скачкообразно. Скачки будут соответствовать энергиям ε_4 , ε_3 и т. д.

В промежутках между скачками вероятность перехода будет падать с ростом энергии $\sim \varepsilon^{-1/2}$. Вероятность переходов зависит от интенсивности волны. Эта

зависимость иллюстрируется на рисунке 3, где представлена зависимость

$\sigma_n(I) = W_n(\varepsilon, I)/I$ эффективного сечения n – фотонных переходов 1-2 от интенсивности волны (для случая, когда электрическое поле направлено вдоль оси (111) кристалла).

Предыдущие формулы можно сравнить с результатом, который был получен в борновском приближении для задачи о рассеянии электронов на локализованном потенциале в поле интенсивной электромагнитной волны [20].

Сечение рассеяния в этой работе получалось как произведение множителя, зависящего от интенсивности волны и выражающегося через функции Бесселя по аналогии с формулой (8), и сечения для случая волны нулевой интенсивности. Аргумент функции Бесселя был пропорционален величине изменения импульса в процессе рассеяния. В случае локализованного потенциала рассеяния, изменение импульса в процессе рассеяния может быть произвольным, в то время как в случае рассеяния на кристаллической решетке изменение импульса пропорционально векторам обратной решетки. Именно поэтому осциллирующая структура функций Бесселя остается для случая рассеяния в кристалле и пропадает для случая рассеяния на атомах.

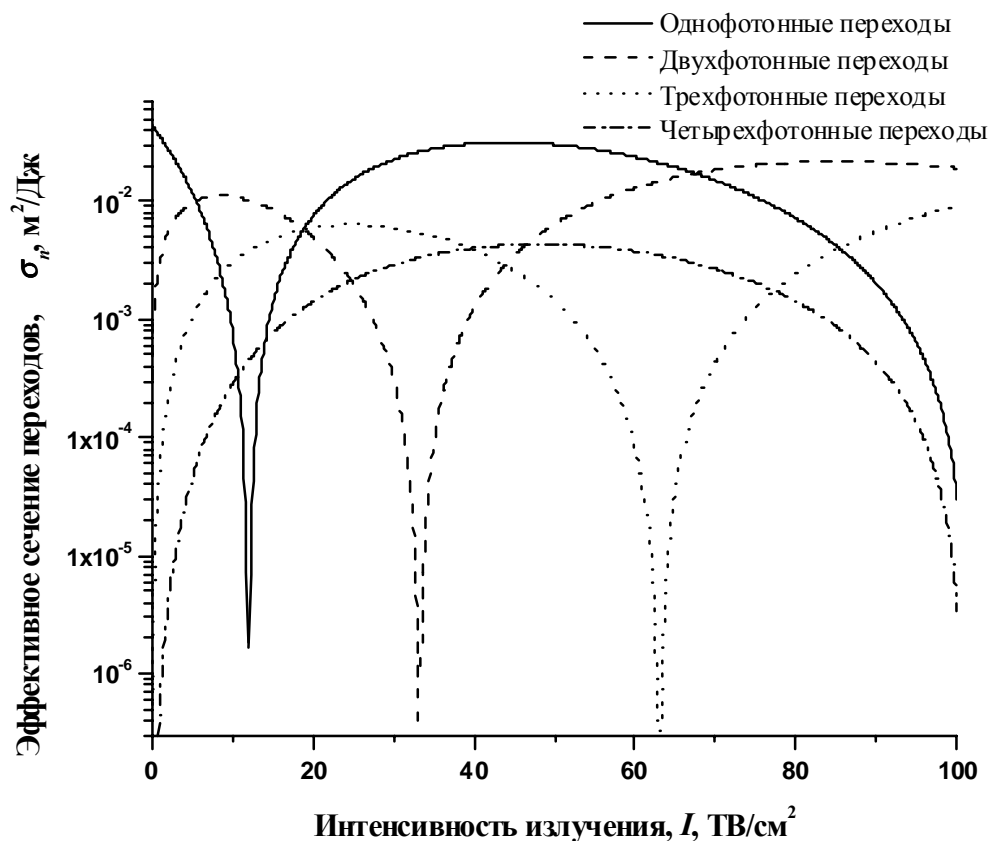


Рис.3 Зависимость эффективного сечения n -фотонного перехода 1-2 от интенсивности лазерного излучения для энергии электронов 1.26эВ ($\varepsilon_1 < 1.26\text{эВ} < \varepsilon_0$). Электрическое поле направлено вдоль оси (111) кристалла. Все параметры соответствуют кристаллу CsI.

Таким образом, из формулы (11) и кривых на рис. 3 видно, что переходы с ветви 1 на ветвь 2 возможны не только для фиксированных значений энергии электронов $\varepsilon = \varepsilon_{1,2,3,4}$, но и для достаточно широкого диапазона электронных энергий. Вероятности 2-х и 3-х фотонных переходов быстро растут с ростом интенсивности. При тех интенсивностях, которые были в наших экспериментах (до 10^{13} Вт/см²), они становятся сравнимыми с вероятностью однофотонного перехода. Таким образом, происходят быстрые переходы с первой ветви на вторую, со второй на третью и т. д. Следовательно, появляется возможность достаточно быстро нагревать электроны, поскольку скорость прямых переходов значительно выше скорости электронных переходов с участием фононов.

На базе модели прямых (без участия фононов) межветвевых переходов можно качественно объяснить поведение высокоэнергетичной части фотоэлектронного спектра. В самом простейшем случае структуру энергетических уровней зоны проводимости диэлектрического кристалла можно представить, как последовательность эквидистантных уровней (начиная с нулевой энергии и выше). Расстояние между уровнями в энергетическом пространстве, в рамках этой простейшей модели, равно энергии фотона $\hbar\omega$. Для моделирования спектра мы учли процесс ионизации, процессы стимулированных одно-, двух- и трехфотонных переходов (с поглощением и испусканием фотонов) и гибель электронов при нулевой энергии. Рассматривался двухстадийный процесс. Предполагалось, что на первой стадии идет только процесс ионизации, а на второй стадии происходят все остальные процессы динамики электронных возбуждений в зоне проводимости. Это допущение достаточно реалистичное, поскольку лазерный импульс имеет гауссовскую форму, и процесс ионизации активно идет только на пике импульса. Для нашего моделирования мы использовали следующий вид ионизационного члена в кинетическом уравнении:

$$P(I) = \sigma_4 \left(\frac{I}{\hbar \omega} \right)^4 N_s + \sigma_1 \left(\frac{I}{\hbar \omega} \right) n_d, \quad \text{где первое слагаемое отвечает за}$$

четырефотонную ионизацию из валентной зоны, а второе слагаемое отвечает за ионизацию дефектов. Здесь сечение $\sigma_4=2 \times 10^{14} \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$ [4]. Это значение получалось для NaCl, однако другие диэлектрические кристаллы должны иметь приблизительно такое же значение [18]. Величина N_s представляет собой плотность атомов в твердом теле. В качестве сечения σ_1 грубо можно взять сечение однофотонного перехода в зоне проводимости, которое может быть оценено, используя формулу (11). Здесь мы также ввели концентрацию дефектов n_d , которая может быть оценена как $10^{-4} N_s$. В этой модели мы также использовали допущение о том, что скорость электронных переходов не зависит от энергии электрона и одинакова для процессов вынужденного поглощения и испускания фотонов. Значения скорости одно-, двух- и трехфотонных переходов могут быть вычислены по формуле (11). Для нашего моделирования мы использовали усредненные по энергии значения $W_n(\varepsilon)$. В расчетах было использовано значение $w_{loss}=0.3 \text{ fs}^{-1}$ для скорости гибели электронов на дне зоны проводимости. Таким образом, можно записать уравнение Фоккера-Планка для концентрации электронов $n(\varepsilon, t)$ с кинетической энергией ε в момент времени t :

$$\frac{\partial n(\varepsilon, t)}{\partial t} = \sum_{k=1}^3 w_k \{ [n(\varepsilon + k \hbar \omega, t) - n(\varepsilon, t)] + \theta(\varepsilon - k \hbar \omega) [n(\varepsilon - k \hbar \omega, t) - n(\varepsilon, t)] \} - w_{loss} n(\varepsilon, t) \theta(\hat{\varepsilon} - \varepsilon) \theta(\varepsilon), \quad (12)$$

где $\hat{\varepsilon}$ - максимальная энергия электронов, при которой возможен процесс прямой рекомбинации, мы предположили, что $\hat{\varepsilon} < \hbar \omega$, w_j - скорость j - фотонных электронных переходов в зоне проводимости. Как было отмечено выше, мы сделали допущение о двухстадийном процессе. Поэтому, концентрация электронов в начальный момент времени (после окончания первой стадии - ионизации) равна $n(\varepsilon = 0, t = 0) = P(I) \tau_{imp}$, а $n(\varepsilon > 0, t = 0) = 0$, где $\tau_{imp} = 40 \text{ фс}$ - длительность импульса. Предлагаемая модель приводит к диффузионному типу движения электронов в энергетическом пространстве под

действием интенсивного лазерного излучения. Нормированный спектр электронов в зоне проводимости, который получается из численного решения кинетического уравнения, представлен на рис. 4. Даже такой простейший подход дает качественное объяснение поведения высокоэнергетической части фотоэлектронного спектра.

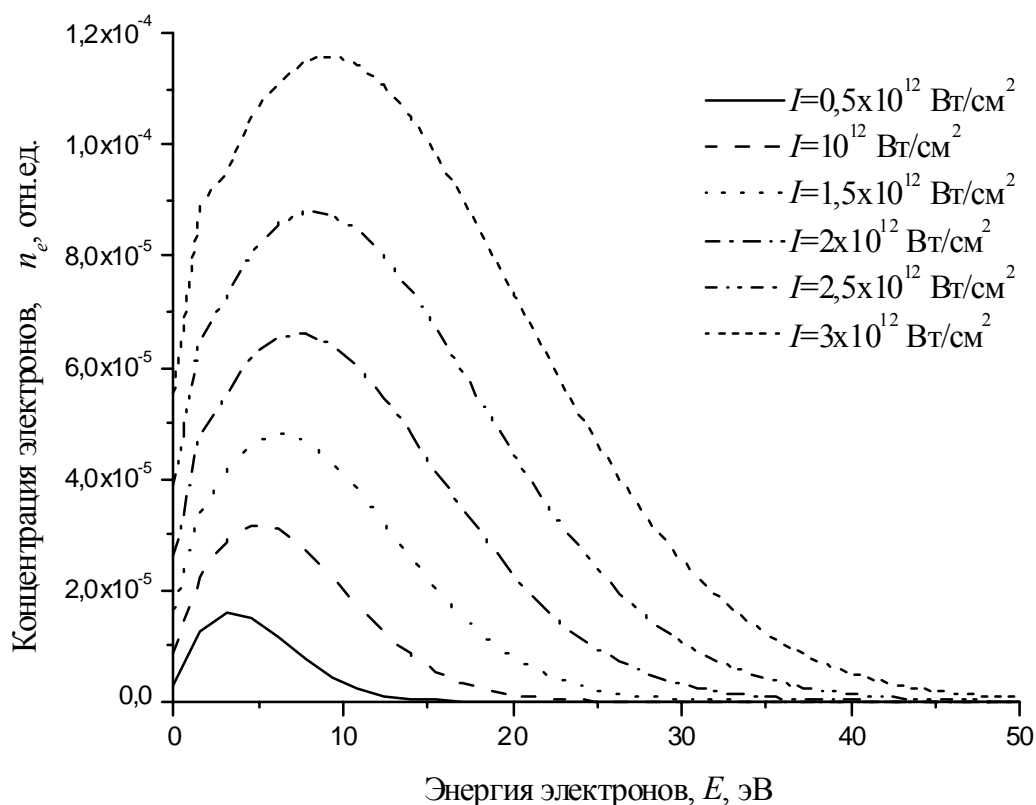


Рис.4. Нормированный спектр электронов в зоне проводимости, получаемый из численного решения кинетического уравнения. Концентрация электронов нормирована на величину плотности атомов в твердом теле N_s ($N_s \sim 10^{22} \text{ см}^{-3}$ для CsI).

Дальнейшее развитие этой модели должно включать более детальное описание стадии ионизации и стадии нагрева электронов до высоких энергий. Также дополнительно необходимо учесть стадию движения электронов к поверхности внутри образца и процесс эмиссии. Кроме того, при рассмотрении стадии нагрева надо учитывать процессы электрон-фононного и электрон-

электронного рассеяния, скорость которых будет существенно зависеть от энергии электронов. Эти процессы могут оказывать влияние на энергетическую структуру профиля плато в области высоких энергий электронов.

В данной работе были представлены фотоэлектронные спектры кристалла CsI, облучаемого лазерными импульсами с длительностью 40 фс и пиковой интенсивностью $5 \times 10^{11} - 3 \times 10^{12}$ Вт/см². В фотоэлектронном спектре наблюдались электроны с неожиданно высокими энергиями и широкое плато с экспоненциальной отсечкой. Для возбуждения с интенсивностью 3×10^{12} Вт/см² плато расширяется до 27 эВ, при этом 90% фотоэлектронов имеют энергию больше 3,5 эВ. Поведение низкоэнергетической части спектра может быть объяснено с помощью электрон-фотон-фононного механизма нагрева электронов. Однако появление в спектре широкого плато и высокоэнергетичных электронов (с энергией >10 эВ) не может быть объяснено с помощью этого механизма. Мы предложили дополнительный механизм электронного нагрева, который основан на прямых межветвевых переходах в зоне проводимости. При тех интенсивностях, которые были в наших экспериментах, вероятности двух- и трехфотонных переходов могут быть сравнимы с вероятностью однофотонных переходов. Многофотонные переходы могут осуществлять электроны со значительно меньшей энергией, чем энергия порога однофотонных переходов. Таким образом, прямые переходы (без участия фононов) могут наблюдаться даже на начальной стадии процесса электронного нагрева, на которой может происходить нагрев низкоэнергетичных электронов, попадающих на дно зоны проводимости сразу после ионизации. Механизм прямых межветвевых переходов дает возможность поглощения более чем 10-15 фотонов электроном за время лазерного импульса. Простая каскадная модель, учитывающая одно-, двух- и трехфотонные переходы, дает качественное объяснение фотоэлектронных спектров CsI. Дальнейшее развитие этой модели должно включать более детальное и адекватное описание стадии ионизации, нагрева электронов до высоких

энергий, движения электронов внутри образца к поверхности и стадию эмиссии.

Список литературы

1. P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite and N. K. Rahman, Phys. Rev. Lett. 42, 1127 (1979)
2. X. F. Li, A. L'Huillier, M.Ferray, L.A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus, Phys. Rev. A, 39, 5751-5761, (1989)
3. Л.В. Келдыш, ЖЭТФ, 1964. **47**, С. 1945
4. B.C.Stuart, M.D. Feit, S. Herman, A.M.Rubenchik, B.W.Shore and M.D.Perry, Phys. Rev. B **53**, 1749 (1996)
5. A. Kaiser, B. Rethfeld, M. Vicanek, G. Simon, Phys. Rev. B 61, 11437 (2000)
6. Ph. Daguzan, S. Guizard, K. Krastev, P. Martin, and G. Petite, Phys. Rev. Lett. **77**, 2352 (1994)
7. Ph. Daguzan, S. Guizard, P. Martin, and G. Petite, J. Opt. Soc. Am. B, 13, 138 (1996)
8. F. Quéré, PhD thesis, l'Université Paris VI (2000)
9. V. Bagnoud, F. Salin, Appl. Phys. B, 70, S165-S170, (2000)
10. G. G. Paulus, W. Nickich, Huale Xu, P. Lambropoulos, and H. Walther, Phys. Rev. Lett. 72, 2851 (1994)
11. Vaisburd D.I, P.A.Polivanov, B.N.Semin, J. Appl. Spectroscopy 62, 130 (1995)
12. A.N. Vasil'ev, Y. Fang, and V.V. Mikhailin, Phys. Rev. B **60**, 5340 (1999)
13. À. Belsky, A. Vasil'ev, B.Yatsenko, P. Martin, H. Bachau, G. Geoffroy, S. Guizard, 6th workshop "Sources coherentes et incoherentes UV, VUV ET X applications et developpements recents", UVX-6, 11 - 14 Juin 2002, Ile d'Oleron, France, Abstracts p.64

14. F. Quere, S. Guizard, Ph. Martin, G. Petite, H. Merdji, B. Carre, J-F. Hergott, and L. Le Deroff, *Phys. Rev B* **61**, 9883 (2000)
15. B.C. Stuart, M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.W. Shore, and M.D. Perry, *Phys. Rev Lett.* **74**, 2248 (1995)
16. M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, and F. Krausz, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4076 (1998)
17. V.T. Platonenko, V.V. Strelkov, *Quantum Electron.*, **28** (7), 564 (1998)
18. S.C. Jones, P. Braunlich, R.T. Casper, X.-A. Shen, and P. Kelly, *Opt. Eng.* **28**, 1039 (1989)
19. В.Ф. Гантмахер, И.Б. Левинсон, *Рассеяние носителей тока в металлах и полупроводниках.* – М.: Наука, 1984.
20. N.M. Kroll and K.M. Watson, *Phys. Rev. A* **8**, 804 (1973).

Андрей Новомирович Бельский, Андрей Николаевич Васильев, Борис Николаевич Яценко, Henri Bachau, Patrick Martin, Ghita Geoffroy, Stéphane Guizard, Guillaume Petite

Нагрев электронов в зоне проводимости кристалла CsI под действием мощных фемтосекундных лазерных импульсов

Препринт НИИЯФ МГУ- 2003-8/721

Работа поступила в ОНТИ 14.02.2003 г.

ИД № 00545 от 06.12.1999

Издательский отдел Учебно-научного центра довузовского образования

117246, Москва, ул. Обручева, 55А
119992, Москва, Ленинские горы, ГЗ МГУ, Ж-105а
Тел./факс (095) 718-6966, 939-3934
e-mail: izdat@abiturcenter.ru
<http://www.abiturcenter.ru>

Гигиенический сертификат № 77.99.2.925.П.9139.2.00 от 24.02.2000

Налоговые льготы – Общероссийский классификатор продукции
ОК-005-93, том 1 – 953000

Заказное. Подписано в печать __. __. 2003г. Формат 60x90/16

Бумага офсетная № 2. Усл.печ.л. ____

Тираж...30...экз. Заказ № _____

Отпечатано в Мини-типографии УНЦДО