

PÉCSI TUDOMÁNYEGYETEM

Fizika Doktori Iskola

Nemlineáris optika és spektroszkópia program

Ultrarövid lézerimpulzusok által keltett plazmonikus fotoemisszió és elektrongyorsítás vizsgálata

PhD értekezés

Márton István

Témavezető:

Dr. Dombi Péter

tudományos főmunkatárs

MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont



Pécs, 2017

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés	3
2. Felületi plazmonok és ultragyors fotoemisszió	6
2.1 Felületi plazmonok	6
2.1.1 Felületi plazmon polariton	8
2.1.2 Lokalizált felületi plazmonok.....	15
2.2 Ultragyors fotoemisszió jellemzői	21
2.3 Elektrongyorsítás felületi plazmontérben.....	25
2.4 A felületi plazmonos fotoemisszió és elektrongyorsítás kísérleti előzményei.....	28
2.4.1 Fotoemisszió érdekes felületekről	29
3. Célkitűzés	31
4. Módszerek és alkalmazott eljárások.....	33
4.1 A mérések kivitelezése és a kísérleti elrendezés bemutatása.....	33
4.1.1 A femtoszekundumos fényforrás és impulzuskarakterizálás	33
4.1.2 A repülési idő spektrométer.....	37
4.2 A minták előállítása	39
4.2.1 Elektronsugaras párologtatás.....	39
4.2.2 Nanogömb litográfia.....	40
4.3 Ellipszoidális nanorészecskéken keltett plazmonok modellezése.....	41
5. Ultragyors plazmonikus elektronemisszió kísérleti vizsgálata különböző érdességű mintákról	46
5.1 Kísérleti eredmények.....	46
5.2 Diskusszió.....	50
6. Ultragyors plazmonikus elektronemisszió elméleti vizsgálata a felületi érdesség függvényében.....	53
6.1 A modell elemei.....	53
6.2 A modellezési eredmények, összevetés a kísérlettel	56
7. Plazmonikus nanorészecskékről történő elektronemisszió vivő-burkoló fázisfüggése....	58

7.1	A modell segítségével levonható következtetések	58
7.2	Az eredmények diszkussziója	61
8.	Plazmonikus nanorészecskéről kilépő elektronok és THz-es sugárzás kapcsolata.....	65
8.1	THz-es sugárzás keltése nanorészecskékről	65
8.2	Kísérleti eredmények a fotoemissziós és THz-es jelek összehasonlítására	68
8.3	A mérések diszkussziója	71
9.	Összefoglalás.....	75
10.	Köszönetnyilvánítás	79
11.	Saját publikációk	80
12.	Irodalomjegyzék.....	83

1. Bevezetés

A lézerek felfedezésével együtt elkezdődött a kapcsolódó alkalmazások fejlesztése is, ami miatt mára a lézerek az ipar, illetve az orvostudomány egyes területein nélkülözhetetlenekké váltak. Mindezzel párhuzamosan a lézerfizika is sokat fejlődött, megjelentek az impulzusüzemű lézerek, valamint egyes technikák alkalmazásával, mint amilyen a fázismodulált impulzuserősítés (chirped pulse amplification, CPA [1,2]) jelentősen megnövekedett az általuk szolgáltatott impulzusenergia is. Szélessávú lézerközegek (festékek, titán-zafir [3]) és diszperziókompenzáló eszközök segítségével, mint amilyen a prizmapár [4], diffrakciós rács [5] vagy a fáziskorrigáló („csörpölt”) tükör [6], sikerült egyre rövidebb impulzushosszat elérni. További fontos fejlemény, hogy manapság lehetőség nyílik a legrövidebb lézerimpulzusok ún. vivő-burkoló (CEP) fázisának szabályozására, valamint mérésére is [7].

A fentiek alapján nem meglepő, hogy a lézereknek, illetve a velük elvégezhető kísérleteknek az alap kutatásban is kiemelkedő szerep jut, például a részecskegyorsítás új módszereinek kidolgozásában [8,9], a magfúzió létrehozásában [10,11], a precíziós frekvenciametrológiában [12], melynek segítségével akár a másodperc jóval pontosabb, az atomórák pontosságát nagyságrendekkel meghaladó definíciója is lehetővé válik. Az ultragyors lézerek által megvalósítható nagy időbeli felbontást kihasználva jöhetett létre a femtokémia [13] és az attofizika [14] tudománya is, melyeknek lényege az atomok és a molekulák ultragyors dinamikájának megismerése. Jelentős kutatási területté nőtte ki magát a legkülönbözőbb fény-anyag kölcsönhatási folyamatok vizsgálata, melynek során például jelentősen bővültek a fotoemisszióval kapcsolatos ismeretek is [15-20].

Mind az alap kutatás, mind a lehetséges alkalmazások [21-23] szempontjából érdekesek a felületi plazmonokkal kapcsolatos kutatások is [24]. A felületi plazmon egy fém vezetési elektronjainak felület mentén kialakuló töltéssűrűség hullámai. A plazmonika több módon is

segítheti a biomolekulák detektálását [25]. Ilyen módszer a felületerősített Raman-spektroszkópia (Surface Enhanced Raman Spectroscopy, SERS) [26]. Ennek során a felületi plazmon térnövekményének, valamint más kémiai effektusoknak köszönhetően az egy molekulacsoportokról észlelhető Raman szórás nagymértékben, akár 10^6 - 10^8 -os [25] nagyságrendet is erősödhet. A felületi plazmonok perspektivikus alkalmazása a napelemek hatásfokának növelése, melyre több módszer is ismert [27,28]. Említésre méltó a fotodiódák [29-31] hatásfokának növelése, vagy egy újfajta rákterápiás módszer kidolgozása is [32]. A felületi plazmonok elektromágneses közelterére nem érvényes a távoltereknél érvényes diffrakciós limit, valamint a felületi plazmonok diszperziós relációjából következik, hogy egy adott frekvenciával rendelkező plazmon hullámhossza rövidebb az ugyanezen frekvenciához tartozó fényénél. Ezen tulajdonságokat kiválóan lehet hasznosítani mikroszkópok felbontóképességének növelésére [33,34] vagy litográfiai alkalmazásokban [35-37]. Egy másik felhasználási lehetőség lehet a plazmonikus hullámvezetők [38-40]. Ezen eszközök előnye a legtöbb más optikai adatátvitelt alkalmazó rendszerrel szemben, hogy a miniatürizálásának nem szab határt az alkalmazott fény hullámhossza, vagyis a kis méret társítható az optikai rendszerekre jellemző nagy adatátviteli sebességgel [41,42]. Lehetséges alkalmazások még a plazmonikus emitterek, illetve ultragyors fotokatódok [43-45] olyan helyeken, ahol nagy szükség van a keltett elektronok időbeli szinkronizációjára (szabadelektron-lézer), vagy az olyan alkalmazásokban, ahol a nagy térbeli pontosság kiegészíthető az ultrarövid impulzusok által keltett elektronok időbeli felbontásával, mint a transzmissziós elektronmikroszkópban (transmission electron microscope, TEM [46,47]), illetve a diffrakciónál [48].

A felületi plazmonokhoz kapcsolódó evaneszcens elektromágneses tér jelentősen nagyobb is lehet, mint a megvilágító (plazmont keltő) fény elektromágneses tere [24], nagymértékben befolyásolva a fotoemisszió [49-51], és az így nyert elektronnyaláb

tulajdonságait [52-55]. Ezen disszertáció keretében elvégzett kutatások is a plazmonikus fotoemisszió tulajdonságait hivatottak vizsgálni.

A disszertáció elején bemutatom a dolgozat szempontjából legfontosabb jelenségeket. Kitérek a felületi plazmonokkal kapcsolatos jelenségekre, ideértve mind a felületi plazmon polaritonokat, mind a lokalizált felületi plazmonokat, valamint tárgyalom a fotoemisszió lehetséges mechanizmusait, a plazmonikus fotoemissziót és elektrongyorsítást. A Célkitűzések bemutatása után ismertetem az általam, illetve a velünk együttműködő kutatócsoportok által használt kísérleti berendezéseket illetve eljárásokat, melyek ismerete nélkülözhetetlen a disszertáció eredményeinek megértése szempontjából, majd rátérek a saját eredmények ismertetésére. Ennek során bemutatom a felületi érdesség plazmonikus fotoemisszióra és gyorsításra gyakorolt hatásának kísérleti aspektusait, valamint a vonatkozó elméleti megfontolásokat is. Ismertetem a vivő-burkoló fázistól függő fotoemisszió sajátosságait plazmonikusan rezonáns és nemrezonáns nanorészecskék esetére. A saját eredmények közt utolsóként a plazmonikusan gyorsított elektronok és a THz-es sugárzás keltésének összefüggéseit vizsgáló kísérletekről számolok be.

2. Felületi plazmonok és ultragyors fotoemisszió

2.1 Felületi plazmonok

Egy fém vezetési elektronjainak felület mentén kialakuló töltéssűrűség-oszcillációját, illetve az ezen oszcillációhoz kapcsolódó, a fém felületére merőlegesen exponenciálisan lecsengő elektromágneses teret felületi plazmonnak nevezzük [24,56]. A jelenséget fémek vezetési elektronjainak gerjesztésével hozhatjuk létre, bizonyos feltételek megléte esetén. A felületi plazmonok létrejöttét elektromosan töltött részecskék, pl. elektronok által történő gerjesztéssel, vagy tisztán optikai úton, egy fém-vákuum, illetve fém-dielektrikum határfelület megfelelő megvilágításával érhetjük el. A felületi plazmonok jobb megértése céljából ismertetem a fémek optikai tulajdonságaira vonatkozó ismerteteket, majd tárgyalom a felületi plazmon polaritonokat, valamint a lokalizált felületi plazmonokat is.

A fémek leírásánál felhasználjuk, hogy a fémrácsban periodikusan elhelyezkedő atomok, illetve atomtörzsek miatt létrejövő szintén periodikus potenciálban mozognak az elektronok. Az így nyert elmélet sávméleti modellként ismert, és jól magyarázhatóak vele többek közt a fémek vezetési tulajdonságai. Egy másik megközelítés a fémek plazmamodellje [24,56-58], ahol az elektronokat mint szabad elektrongázt tekintjük a pozitív töltésű atommagok körül. Ebben a leírásban központi szerepet játszik az elektrongáz válasza egy külső elektromos térre. Ilyenkor ugyanis a fémbe levő elektronokat mozgásra készíti a külső elektromágneses tér, azonban ez a mozgás időben csillapodik a fellépő ütközések miatt. Ezek alapján Stefan Maier gondolatmenetét követve [56] felírható az

$$m\ddot{x} + m\gamma\dot{x} + eE = 0 \quad (1)$$

mozgásegyenlet, ahol m és e az elektronok effektív tömege és töltése, \mathbf{E} a külső elektromos tér, valamint γ jelenti az elektronok ütközésének frekvenciáját. Elektromágneses hullám esetén az elektromos tér időfüggése megadható az $\mathbf{E}(t)=\mathbf{E}_0e^{-i\omega t}$ alakban, és a mozgásegyenlet megoldása felírható a

$$\mathbf{x}(t) = \frac{e}{m(\omega^2+i\gamma\omega)} \mathbf{E}(t) \quad (2)$$

összefüggéssel. Mivel a polarizációsűrűség megadható a $\mathbf{P}=-nex$ alakban, így a

$$\mathbf{P} = -\frac{ne^2}{m(\omega^2+i\gamma\omega)} \mathbf{E} \quad (3)$$

kifejezést nyerjük, ahol n jelenti az elektronok sűrűségét. Ebből már következtethetünk az elektromos eltolásvektorra, melyre a

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \varepsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2+i\gamma\omega}\right) \mathbf{E} \quad (4)$$

kifejezés adódik, ahol $\omega_p = \sqrt{\frac{ne^2}{\varepsilon_0 m}}$ a plazmafrekvencia, és ε_0 jelöli a vákuum permittivitását.

Innen a szabadelektron-gáz dielektromos állandójára egyszerűen következtethetünk:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon' + i\varepsilon'' = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2+i\gamma\omega} = 1 - \frac{\omega_p^2\tau^2}{1+\omega^2\tau^2} + i \frac{\omega_p^2\tau}{\omega(1+\omega^2\tau^2)}. \quad (5)$$

Amennyiben az elektronok ütközései miatti csillapítás elhanyagolható, úgy a permittivitásra vonatkozó (5) kifejezés az

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad (6)$$

egyenletre egyszerűsödik. A permittitásból közvetlenül kiszámolható a fém törésmutatója is $\tilde{n}(\omega)=n(\omega)+i\kappa(\omega)$, a két mennyiség közt a következő összefüggések teremtenek kapcsolatot:

$$\varepsilon' = n^2 - \kappa^2 \quad (7)$$

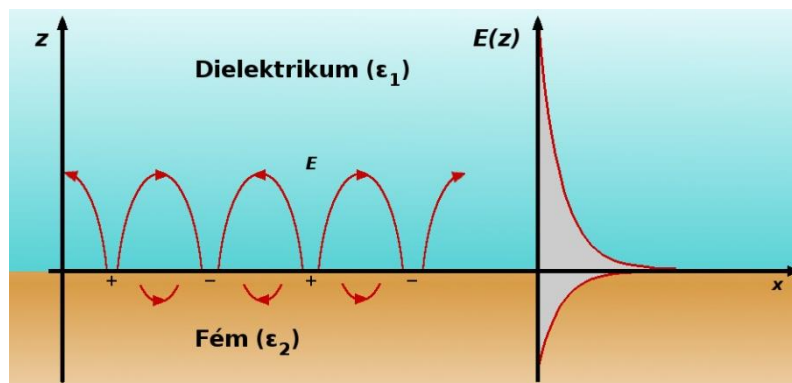
$$\varepsilon'' = 2n\kappa \quad (8)$$

$$n^2 = \frac{\varepsilon'}{2} + \frac{\sqrt{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2}}{2} \quad (9)$$

$$\kappa = \frac{\varepsilon''}{2n} \quad (10)$$

A fém törésmutatója egy komplex szám, melynek a képzetes része az abszorpcióval kapcsolatos mennyiség. Az elmélet alapján a fémek a rájuk eső, és a plazmafrekvenciánál alacsonyabb frekvenciával rendelkező fényt visszaverik, míg ennél magasabb frekvenciákon egy dielektrikum tulajdonságaival bírnak.

2.1.1 Felületi plazmon polariton



1. ábra: Felületi plazmon polariton dielektrikum-fém határfelület mentén. Jól látható a töltéssűrűség-oszcilláció, illetve a felülettől távolodva exponenciálisan lecsengő elektromágneses tér is.

A felületi plazmon polaritonok (FPP) jobb megértéséhez [24,56,57,59] tekintsük az 1. ábrát a megadott dielektromos állandókkal. J. M. Pitarke [59], valamint Stefan Maier [56] gondolatmenetét követve abból indulunk ki, hogy a fém-dielektrikum határfelület közelében kialakuló elektromos és mágneses tereknek ki kell elégíteniük a

$$\text{rot } \mathbf{H}_i = \varepsilon_i \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}_i \quad (11)$$

$$\text{rot } \mathbf{E}_i = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{H}_i \quad (12)$$

$$\operatorname{div} \varepsilon_i \mathbf{E}_i = 0 \quad (13)$$

$$\operatorname{div} \mathbf{H}_i = 0 \quad (14)$$

Maxwell-egyenleteket, ahol nemmágneses anyagokról van szó és feltételezzük a külső töltések és áramok hiányát, továbbá i indexeli a két közeget. A (11)-(14) egyenletek alapján két megoldás létezik, melyek a transzverzális mágneses, illetve a transzverzális elektromos módusokat írják le. A felületi plazmon terjedési irányát az x tengellyel párhuzamosan megválasztva, továbbá figyelembe véve, hogy két közeg határán az elektromos és mágneses térerősség érintő irányú komponensei folytonosan mennek át, a transzverzális elektromos (TE) módus esetén a kialakuló elektromos és mágneses komponenseket a

$$\text{dielektrikum féltérben } (z > 0) \quad \mathbf{E}_1 = (0, E_y, 0) e^{i(k_x x - \omega t)} e^{-\alpha_1 z} \quad (15)$$

$$\mathbf{H}_1 = (H_x, 0, H_{z1}) e^{i(k_x x - \omega t)} e^{-\alpha_1 z} \quad (16)$$

$$\text{fém féltérben } (z < 0) \quad \mathbf{E}_2 = (0, E_y, 0) e^{i(k_x x - \omega t)} e^{\alpha_2 z} \quad (17)$$

$$\mathbf{H}_2 = (H_x, 0, H_{z2}) e^{i(k_x x - \omega t)} e^{\alpha_2 z} \quad (18)$$

alakban, míg a transzverzális mágneses (TM) módust a

$$\text{dielektrikum féltérben } (z > 0) \quad \mathbf{E}_1 = (E_x, 0, E_{z1}) e^{i(k_x x - \omega t)} e^{-\alpha_1 z} \quad (19)$$

$$\mathbf{H}_1 = (0, H_y, 0) e^{i(k_x x - \omega t)} e^{-\alpha_1 z} \quad (20)$$

$$\text{fém féltérben } (z < 0) \quad \mathbf{E}_2 = (E_x, 0, E_{z2}) e^{i(k_x x - \omega t)} e^{\alpha_2 z} \quad (21)$$

$$\mathbf{H}_2 = (0, H_y, 0) e^{i(k_x x - \omega t)} e^{\alpha_2 z} \quad (22)$$

kifejezésekkel lehet megadni, ahol k_x jelenti az x irányú hullámszámvektort, ω a körfrekvenciát, az α együtthatók pedig a felületi plazmonok terének evanescens lecsengést biztosító együtthatói. Ha figyelembe vesszük, hogy egy ideális vezető felület mentén kialakuló hullámok

esetén az elektromos térnek kell, hogy legyen az adott felületre merőleges komponense, úgy a TE módus (s polarizáció) nem jöhet létre, így a felületi plazmon polaritonok TM módussal (p polarizáció) rendelkeznek. A (19)-(22) képleteket a (11) egyenletbe helyettesítve, valamint a szükséges egyszerűsítéseket elvégezve a

$$\text{dielektrikum féltérben } (z>0) \quad (-\alpha_1 H_y, \quad 0, \quad -ik_x H_y) = i\varepsilon_1 \omega (E_x \quad 0 \quad E_{z1}) \quad (23)$$

$$\text{fém féltérben } (z<0) \quad (\alpha_2 H_y, \quad 0, \quad -ik_x H_y) = i\varepsilon_2 \omega (E_x \quad 0 \quad E_{z2}) \quad (24)$$

kifejezésekhez jutunk. Amennyiben az x komponenseket elosztjuk egymással, úgy az

$$\frac{\alpha_1}{\alpha_2} = -\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2} \quad (25)$$

egyenlőséghez jutunk. Ennek fontos fizikai tartalma van, mivel azt mutatja, hogy felületi plazmonok kialakulása csak ott lehetséges, ahol a fém dielektromos állandójának valós része, illetve a dielektrikum permittivitása ellentétes előjelűek. Mivel egy normál dielektrikum relatív permittivitása egy pozitív szám, ezért a fém dielektromos állandójának gyakorlatilag negatívnak kell lennie, ami az (5) képlet alapján a plazmafrekvencia alatt lehetséges. A felületi plazmonok diszperziós relációjának meghatározásához Heinz Raether idevonatkozó megállapításait alapul véve [24] figyelembe kell venni, hogy a beeső fény, illetve a plazmon hullámszámvektorainak meg kell egyezniük, vagyis felírható a

$$i=1,2 \quad \varepsilon_i \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 = k_x^2 + \alpha_i^2 \quad (26)$$

alakban, amiből kiszámolhatjuk az α együtthatókat.

$$i=1,2 \quad \alpha_i = \sqrt{\varepsilon_i \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 - k_x^2} \quad (27)$$

Az α lecsengési együtthatók ismeretében következtethetünk a felületi plazmon terének a felületre merőleges kiterjedésére, vagyis arra a karakterisztikus hosszra, amelyen a felületi plazmon elektromágneses tere az e -ad részére csökken. Ezt az értéket a két féltérre az

$$i=1,2 \quad \hat{z}_i = \frac{1}{|\alpha_i|} \quad (28)$$

képlettel lehet kiszámolni, melyre a

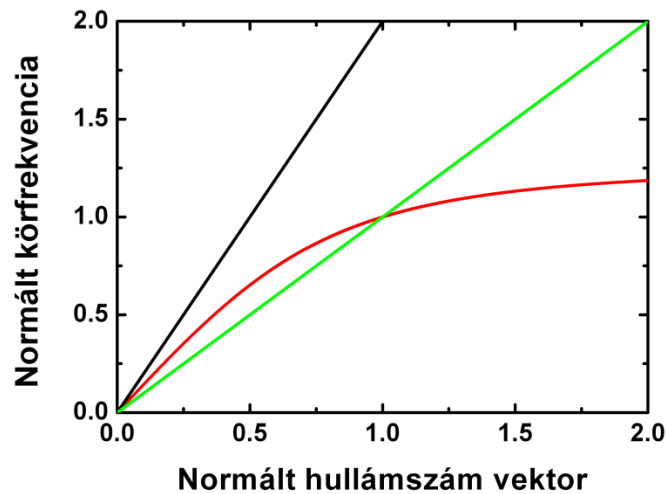
$$\text{dielektrikum féltérben } (z>0) \quad \hat{z}_1 = \frac{\lambda}{2\pi} \sqrt{\frac{\epsilon_1 + \epsilon_2}{\epsilon_1^2}} \quad (29)$$

$$\text{fém féltérben } (z<0) \quad \hat{z}_2 = \frac{\lambda}{2\pi} \sqrt{\frac{\epsilon_1 + \epsilon_2}{\epsilon_2^2}} \quad (30)$$

kifejezések adódnak, ahol λ jelenti a gerjesztő fény hullámhosszát, valamint $\epsilon_2 = \epsilon_2' + i\epsilon_2''$ jelenti a fém dielektromos állandójának valós és képzetes részét. A (25), illetve (26) egyenletekből már levezethető a felületi plazmon polariton hullámszámvektora, melyre a

$$k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}} \quad (31)$$

kifejezés adódik.



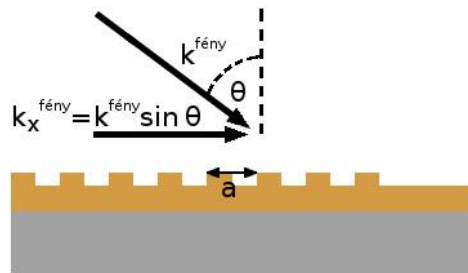
2. ábra: Felületi plazmon polaritonok diszperziós relációja (piros görbe), valamint fénynyaláb diszperziós relációja vákuumban (fekete görbe) és n törésmutatójú közegben (zöld görbe). Plazmonbecsatolás létrejöttének feltétele a fény és a plazmon hullámszámainak illesztése, amely ott lehetséges, ahol a két görbe metszi egymást.

A (31) képletből látszik, hogy a felületi plazmon hullámhossza rövidebb az azt keltő, vákuumban terjedő fény hullámhosszánál. Ahhoz azonban, hogy fénnel plazmont tudjunk kelteni, szükséges a gerjesztő fény, valamint a felületi plazmon polariton hullámszámainak

illesztése, amit nem tudunk elérni a fémfelület egyszerű megvilágításával. Ezen feltétel teljesítésére azonban több módszer is létezik. Az egyik módszer a ráccsal történő becsatolás, melynek során a felületre periodikusan felvitt struktúra periodicitásából származó kvázi-hullámszámvektorral illesztjük a fény és a felületi plazmon hullámszámait. Ilyenkor a hullámszámvektor felírható a

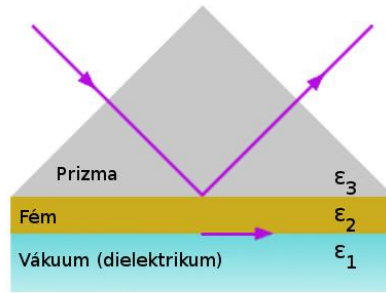
$$k_x^{plazmon} = k_x^{fény} + \nu k_x^{rács}, \quad k_x^{fény} = k^{fény} \sin \theta, \quad k_x^{rács} = \frac{2\pi}{a} \quad (32)$$

alakban, ahol a jelenti a rácsállandót, ν pedig egy pozitív egész szám. Megfelelő tervezéssel akár a plazmon terjedésének iránya is befolyásolható, valamint a fordított folyamat is létrejöhet, vagyis a felületi plazmon polariton a rácson fény formájában kicsatolódik.



3. ábra: Ráccsal történő plazmonbecsatolás. A fény és felületi plazmon polariton hullámszámainak illesztése a rácsperiódusból adódó kvázi-hullámszámvektorral történik.

A másik módszer lényege, hogy a gerjesztő fényt egy $n > 1$ törésmutatójú közegen keresztül bocsátjuk a fémfelületre. Mivel a plazmonbecsatolás beesési szöge az általam használt kísérleti elrendezés esetén 45° közelében van, így a legmegfelelőbb eszköz a plazmonrezonancia előállítására egy derékszögű prizma, melyen a legegyszerűbb esetben egy vékony fémfelület helyezkedik el. Ezt az elrendezést Kretschmann-konfigurációnak nevezik. Ugyan a plazmonok félhengerrel történő gerjesztése is lehetséges lett volna [24,60], azonban ezt a módszert nem alkalmaztuk, mert így a konvex törőfelület által okozott hibák kiküszöbölhetők, a prizmával egyszerűbb plazmont becsatolni, továbbá a megfelelő optikai minőségű prizma előállítása is egyszerűbb és így olcsóbb a félhengerénél.

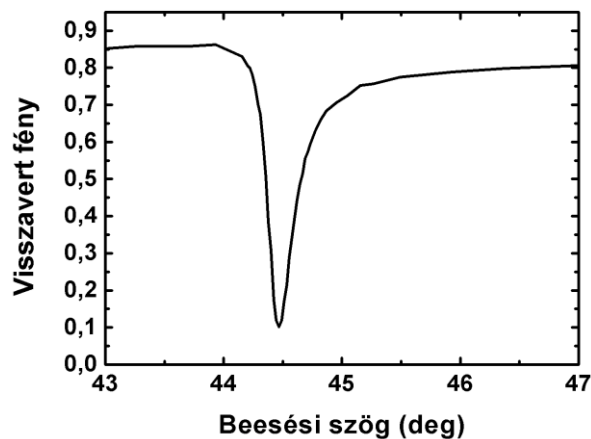


4. ábra. Kretschmann-konfiguráció. A felületi plazmon polariton és a fény hullámszámvektorának illesztése derékszögű prizmaival. A prizma teszi lehetővé a fémfelület megvilágítását a plazmonrezonanciához tartozó szögben.

A gerjesztő fény hullámszámvektorának x irányú komponense ekkor a

$$k_x^{\text{fény}} = k^{\text{fény}} n \sin \theta \quad (33)$$

kifejezéssel írható le, ahol n jelenti a prizma törésmutatóját, θ pedig a fény beesési szögét a fémfelületre. A plazmonkeltés hatásfoka függ az említett fémfelület vastagságától, valamint a beesési szögtől is.



5. ábra. Felületi plazmon polariton keltés hatásfoka a beesési szög függvényében Kretschmann elrendezés esetén 50 nm vastag ezüst felületen.

A plazmonbecsatolás hatásfokának maximuma akkor lép fel, amikor a fémfelületről reflektálódott nyaláb teljesítménye minimális. Ennek kiszámolásához a közegekre a Fresnel egyenleteket kell megoldani. Itt csak a végeredményt adom meg abban az esetben, amennyiben

teljesülnek az $|\varepsilon_2'| \gg 1$, valamint a $|\varepsilon_2''| \ll |\varepsilon_2'|$, feltételek, vagyis a fém dielektromos állandójának valós része abszolútértékben jóval nagyobb, mint a képzetes rész. Ekkor a reflexióra az

$$R = 1 - \frac{4\Gamma_i\Gamma_r}{[k_x^{fénny} - (k_x^0 + \Delta k_x)]^2 + (\Gamma_i + \Gamma_r)^2} \quad (34)$$

kifejezéshez jutunk, ahol k_x^0 jelöli a FPP két felületre számolt hullámszámvektorát, Δk_x jelenti a dielektrikum-fémréteg-dielektrikum rendszer hullámszámának eltérését az egyszerűbb fém-dielektrikum struktúrában számolttól, amit a (31) képlettel kaphatunk meg. Ez a mennyiség függ az alkalmazott fém rétegvastagságától, valamint a gerjesztő fény frekvenciájától. Továbbá $\Gamma_i = \text{Im}(k_x^0)$ jelöli a belső csillapítást, melynek lényege a felületi plazmon polariton energiájának hő formájában történő disszipációja. A felületi plazmon tere ugyanis elektronlyuk párokat hoz létre a Fermi-szinten, melyek elbomlása fononok keletkezésével jár. Az ún. sugárzási csillapítást a $\Gamma_r = \text{Im}(\Delta k_x)$ jelöli, melynek során a felületi plazmon polariton a terjedése során fotonná, azaz fénnyé alakul. Megmutatható, hogy a (34) Lorentz görbének akkor van minimuma, amikor $\Gamma_i = \Gamma_r$, vagyis abban az esetben, ha a belső és a sugárzási csillapítás megegyezik egymással. A fentiek ismeretében meghatározható a plazmonrezonancia szempontjából ideális fémréteg-vastagság, valamint a fény becsatolásának szögfüggése is.

A Fresnel-egyenletek segítségével és a transzmisszió meghatározásával továbbá a plazmonok térnövekménye is kiszámolható, mely mennyiség megadja, hogy a felületi plazmon polariton határfelület közelében létrejövő maximális térerősségének értéke hányszorosan haladja meg a gerjesztő fényforrás (ami általában lézer) elektromos terének értékét. A Fresnel-egyenletek alapján a térnövekmény maximuma akkor észlelhető, amikor a reflexiónak minimuma van. A térnövekményt [24] a

$$|\eta|_{max}^2 = \frac{1}{\varepsilon_1} \frac{2|\varepsilon_2'|^2}{\varepsilon_2''} \frac{q}{1+|\varepsilon_2'|^2} \quad (35)$$

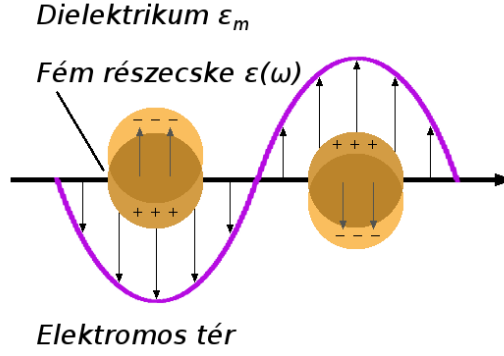
adja meg, ahol ε_1 jelenti a vákuum, vagy dielektrikum dielektromos állandóját, ε_2'' , illetve ε_2' pedig a fém permittivitásának valós, illetve képzetes részét. Továbbá $q^2 = |\varepsilon_2'|(\varepsilon_3 - 1) - \varepsilon_3$, ahol ε_3 a prizma anyagának permittivitását jelöli. A keltett felületi plazmon polariton elektromos tere [57] így felírható a

$$\mathbf{E}_{plazmon} = \eta \mathbf{E}_{lézer} e^{-i(k_x x - \omega t)} e^{-\alpha z} \quad (36)$$

alakban.

2.1.2 Lokalizált felületi plazmonok

A lokalizált felületi plazmonok felfoghatók egy nanorészecske vezetési elektronjainak segítségével megvalósuló dipóloszcillációként [56,61]. Ilyenkor a külső elektromágneses tér hatására a nanorészecskén töltésmegosztás jön létre, mely során kialakul egy olyan elektromos tér, mely a helyi elektromos semlegességet visszaállítani igyekszik. A jelenség jobb megértéséhez Stefan Maier [56] gondolatmenete alapján vizsgáljuk meg egy gömb alakú nanorészecske környezetében létrejövő elektromos teret kváziszztatikus esetben, mely feltétel akkor teljesül, ha a gerjesztett részecske mérete jóval kisebb mint a megvilágító fény hullámhossza ($d \ll \lambda$). Ilyenkor jó közelítéssel a nanorészecske a periodikusan változó elektromágneses tér ugyanazon fázisát látja, ami miatt az elektromos tér homogénnek tekinthető a vizsgálandó tartományon, vagyis a probléma leegyszerűsödik egy elektrosztatikai feladatra.



6. ábra: Lokalizált felületi plazmonok fém nanorészecskén. Jól látható a külső elektromágneses tér által a nanorészecskén létrejövő elektromos dipól, illetve a töltéssűrűség-oszcilláció. Az ábra a kvázisztatikus esetet szemlélteti, vagyis amikor a megvilágító fény hullámhossza jóval nagyobb a nanorészecske méreténél.

A külső elektromos tér felírható az $\mathbf{E}=E_0\hat{\mathbf{z}}$ alakban, ahol $\hat{\mathbf{z}}$ jelenti az elektromos tér irányát. A környező közeg permittivitása ϵ_m , és a közegről feltesszük, hogy izotróp és nem abszorbeáló, míg a gömb dielektromos függvénye $\epsilon(\omega)$. Az elektromos tér kiszámításához a

$$\nabla^2\Phi = 0 \quad (37)$$

Laplace-egyenletet [62] kell megoldani, ahol Φ jelenti a potenciált, amiből az elektromos tér is könnyedén kiszámolható $\mathbf{E}=-\nabla\Phi$. Megmutatható, hogy a megoldás felírható

$$\Phi(r, \theta) = \sum_{l=0}^{\infty} [A_l r^l + B_l r^{-(l+1)}] P_l(\cos(\theta)) \quad (38)$$

alakban, ahol $P_l(\cos(\theta))$ az l -ed rendű Legendre polinomot, θ pedig egy tetszőleges ponthoz az origóból húzott vektor és a z tengely által bezárt szöget jelenti [56,62]. A gömbön kívüli és az azon belüli tér is felírható analitikus alakban, figyelembe véve, hogy a gömb középpontjában levő térerősség nem lehet végtelen.

$$\Phi_{belül}(r, \theta) = \sum_{l=0}^{\infty} A_l r^l P_l(\cos(\theta)) \quad (39)$$

$$\Phi_{kívül}(r, \theta) = \sum_{l=0}^{\infty} [A_l r^l + C_l r^{-(l+1)}] P_l(\cos(\theta)) \quad (40)$$

Az A_l , B_l , illetve C_l együtthatókra a peremfeltételekből következtethetünk. A végtelenben $r \rightarrow \infty$ esetén feltételezhetjük, hogy csak a külső, gerjesztő tér marad meg, amiből következik a $B_l = -E_0$, $l = 1$ -re, valamint $B_l = 0$ ha $l \neq 1$. Mivel az elektromos térerősségvektor érintőleges komponensei, valamint az elektromos eltolásvektor normális komponensei két közeg határfelületén folytonosan mennek át, így a gömb felületén ($r = a$) a következő összefüggéseknek kell teljesülniük:

$$-\frac{1}{a} \frac{\partial \phi_{belső}}{\partial \theta} \Big|_{r=a} = -\frac{1}{a} \frac{\partial \phi_{külső}}{\partial \theta} \Big|_{r=a} \quad (41)$$

$$-\varepsilon_0 \varepsilon \frac{\partial \phi_{belső}}{\partial \theta} \Big|_{r=a} = -\varepsilon_0 \varepsilon_m \frac{\partial \phi_{külső}}{\partial \theta} \Big|_{r=a} \quad (42)$$

Ezek alapján $A_l = C_l = 0$, ha $l \neq 1$, valamint az A_1 , és C_1 értékének meghatározásával lehetővé válik a gömbön belüli, és az azon kívüli potenciál felírása is a

$$\Phi_{belső}(r, \theta) = -\frac{3\varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} E_0 r \cos \theta \quad (43)$$

$$\Phi_{külső}(r, \theta) = -E_0 r \cos \theta + \frac{\varepsilon - \varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} E_0 a^3 \frac{\cos \theta}{r^2} \quad (44)$$

alakban. Ez utóbbi átírható a

$$\Phi_{külső}(r, \theta) = -E_0 r \cos \theta + \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}}{4\pi \varepsilon_0 \varepsilon_m r^3} \quad (45)$$

képletre, ahol \mathbf{p} jelenti a dipólmomentumot.

$$\mathbf{p} = 4\pi \varepsilon_0 \varepsilon_m a^3 \frac{\varepsilon - \varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} \mathbf{E}_0 \quad (46)$$

Mivel a dipólmomentum arányos az elektromos térerősséggel, ezért

$$\mathbf{p} = \varepsilon_0 \varepsilon_m \alpha \mathbf{E}_0, \quad (47)$$

így a gömb polarizálhatósága

$$\alpha_{kvázisztatikus} = 4\pi a^3 \frac{\varepsilon - \varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} \quad (48)$$

nagyságú lesz. A képletből látszik, hogy a polarizálhatóság akkor lesz nagy, ha a fémgömb polarizálhatóságát leíró (48) kifejezésben levő nevező minimális,

$$Re[\varepsilon(\omega)] = -2\varepsilon_m, \quad (49)$$

azonban megemlítendő, hogy a nevező nem tűnik el a fém permittivitásának képzetes része miatt ($Im[\varepsilon] \neq 0$). A potenciál ismeretében meghatározható a gömbön belüli és kívüli térerősség is.

$$\mathbf{E}_{belső} = -\frac{3\varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} \mathbf{E}_0 \quad (50)$$

$$\mathbf{E}_{külső} = \mathbf{E}_0 + \frac{3\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_m} \frac{1}{r^3} \quad (51)$$

Az elektromágneses hullám periodikus oszcillációja miatt $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}$ egy időben oszcilláló dipólmomentumot fogunk kapni.

$$\mathbf{p} = \varepsilon_0 \varepsilon_m \alpha \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}. \quad (52)$$

Ezen dipólmomentum sugárzása megadja a nanogömbön történő szórást, mely az

$$\mathbf{H} = \frac{ck^2}{4\pi} (\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \frac{e^{ikr}}{r} \left(1 - \frac{1}{ikr}\right) \quad (53)$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_m} \left\{ k^2 (\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \times \mathbf{n} \frac{e^{ikr}}{r} + [3\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}] \left(\frac{1}{r^3} - \frac{ik}{r^2} \right) e^{ikr} \right\} \quad (54)$$

alakban írható le, ahol \mathbf{n} jelöli az egységvektort, k pedig a hullámszámvektort. Ezen egyenletekből a Poynting vektor kiszámításával megkapható az adott részecske szórási és abszorpciós hatáskeresztmetszete is:

$$C_{sca} = \frac{k^4}{6\pi} |\alpha|^2 = \frac{8\pi}{3} k^4 a^6 \left| \frac{\varepsilon - \varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} \right|^2, \quad (55)$$

$$C_{abs} = k \operatorname{Im}[\alpha] = 4\pi k a^3 \left[\frac{\varepsilon - \varepsilon_m}{\varepsilon + 2\varepsilon_m} \right]. \quad (56)$$

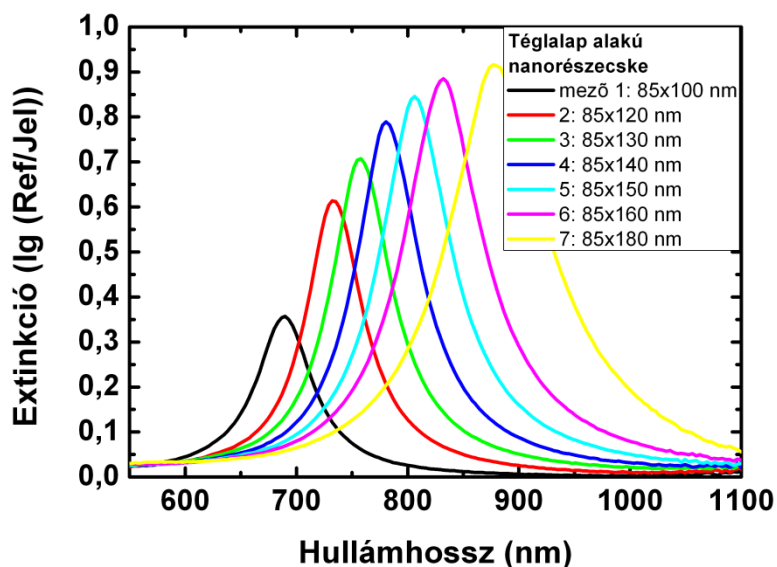
Ezek alapján a részecske extinkciós hatáskeresztmetszete, mely az abszorpciós és szórási hatáskeresztmetszetek összege, felírható az

$$C_{ext} = C_{abs} + C_{sca} = 9 \frac{\omega}{c} \varepsilon_m^2 V \frac{\varepsilon''}{[\varepsilon' + 2\varepsilon_m]^2 + \varepsilon''^2} \quad (57)$$

összefüggéssel, ahol V jelöli a nanogömb térfogatát, valamint $\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon''$. Az (55)-(57) képletek alapján látható, hogy mind az abszorpciós valamint szórási, és ezáltal az extinkciós hatáskeresztmetszetek is akkor a legnagyobbak, amikor az (49) feltétel teljesül. Abban az esetben, ha a részecske elegendően nagy az alkalmazott elektromágneses sugárzás hullámhosszához képest, akkor a kvázisztatikus közelítés helyett a Mie-féle szóráselmélet alkalmazható [56,61,63], melynek során figyelembe vesszük, hogy a nanorészecske a ráeső elektromágneses sugárzás más-más fázisát látja, vagyis a probléma nem közelíthető meg úgy, mintha a részecske egy homogén elektromos térben lenne. Ezt a jelenséget retardációs effektusnak nevezzük. A elmélet leírja a részecskén kialakuló magasabb rendű módusokat (kvadrupól, hexapól, oktapól, stb.) is, azonban a Mie-elmélet alapján az elsőrendű, vagyis dipólközelítésben a gömb polarizálhatósága felírható az

$$\alpha_{Mie} = 4\pi a^3 \frac{1 - \frac{1}{10}(\varepsilon + \varepsilon_m)x^2 + O(x^4)}{\frac{\varepsilon + 2\varepsilon_m}{\varepsilon - \varepsilon_m} - \frac{1}{10}(\varepsilon + 10\varepsilon_m)x^2 - i\frac{16}{9}\varepsilon_m^{\frac{3}{2}}x^3 + O(x^4)} \quad (58)$$

összefüggéssel, ahol $x = \frac{\pi a}{\lambda_0}$, ami egy, a gömb méretétől, valamint a megvilágító fény hullámhosszától függő paraméter. A számlálóban levő x -től függő tag a gerjesztő fény, míg a nevezőben x -ben másodrendű tag a depolarizációs tér retardációját írja le. Az (58) képlet alapján a méret növekedésével a rezonancia a hosszabb hullámhosszak felé tolódik el (ld. 7. ábra).



7. ábra: Különböző méretű téglalap alakú nanorészecskék extinkciós spektrumai. Az egyes spektrumokhoz tartozó nanotégla két oldalának hosszát az ábra jobb felső sarkában tüntettem fel. Jól látható a méret változásának hatása az extinkcióra, melynek maximuma a beeső fény polarizációjától függően a méret növelésével a nagyobb hullámhosszak felé tolódik el (forrás: Dombi Pétertől).

Ezen jelenség szemléletes magyarázata, hogy a nanorészecskén töltésszétválasztás következik be, ahogy kölcsönhat az elektromágneses hullámmal, azonban a töltések között visszatérítő erő lép fel. A részecske méretének növelésével az ellentétes töltések nagyobb távolságra tudnak egymástól eltávolodni, ami kisebb visszatérítő erőt és ezáltal kisebb rezonanciafrekvenciát jelent, vagyis a nanorészecske rezonanciagörbéje a hosszabb hullámhosszak felé tolódik el. Ez alapján válik érthetővé az ellipszoidok rezonanciafrekvenciájának különbsége az egyes fő tengelyek mentén, vagyis amikor a gerjesztő fény polarizációja párhuzamos az ellipszoid adott tengelyével. Ilyenkor ugyanis a töltésszétválasztás a beeső fény polarizációjának függvényében az ellipszoid más tengelyei mentén fog lezajlani, ami a már vázolt módon vezet az extinkciós spektrum megváltozásához.

Az (58) egyenletből könnyen visszakaphatjuk a (48) képlettel leírt, kvázisztatikus közelítésben kiszámolt polarizálhatóságot, amennyiben a részecske mérete elhanyagolhatóan kicsi az azt gerjesztő fény hullámhosszához képest. Általános (nem gömbi) esetben egy

tetszőleges geometriával rendelkező részecske választ a ráeső sugárzásra a Maxwell-egyenletek numerikus megoldásával kaphatjuk meg [63], mint amilyen a peremelem (boundary element method BEM, [64]), vagy a véges időbeli differenciák (finite difference time domain FDTD) módszere [65].

Egymással kölcsönható nanorészecskék [56,66] esetén a rendszer viselkedése valamelyest megváltozik. Amennyiben továbbra is kvázisztatikus közelítésben vizsgáljuk az egyedi nanorészecskéket, úgy a rendszert kölcsönható dipólokként kezelhetjük. Ha az egyes nanorészecskék kellően közel vannak egymáshoz, vagyis a nanorészecskék közti távolság jóval kisebb, mint a beérkező fény hullámhossza, úgy a nanorészecskéken létrejövő lokalizált felületi plazmonokhoz tartozó közelterek hatnak kölcsön egymással, a távolság harmadik hatványával fordítottan arányosan. Az ilyen összeállítás extinkciós spektruma is elhangolódik, amennyiben egy egydimenziós nanorészecskékből álló láncot tekintünk, úgy a rezonanciaspektrumban a lánchoz viszonyított (merőleges) transzverzális polarizációval érkező fényre kék, míg a longitudinális polarizációval rendelkező fényre vöröseltolódást tapasztalhatunk.

2.2 Ultragyors fotoemisszió jellemzői

A fémek felületéről történő egyfotonos fotoemissziót Hertz, illetve Hallwachs fedezte fel a 19. század végén [67,68], majd Einstein adta meg rá a magyarázatot 1905-ben [69]. Ennek lényege, hogy a fény hatására fémfelületről kilépő elektronok kinetikus energiája arányos a megvilágító fényhullám frekvenciájával, a kilépő elektronok száma pedig az intenzitással. Továbbá az effektus egy bizonyos frekvencia, az ún. küszöbfrekvencia alatt nem jöhet létre. A jelenség magyarázata természetesen a frekvenciától függő fotonenergia, mely a fotoemisszió során részben a kilépési munkára, részben pedig az elektron mozgási energiájára fordítódik. Ezt fejezi ki Einstein fotoemisszióra vonatkozó összefüggése is,

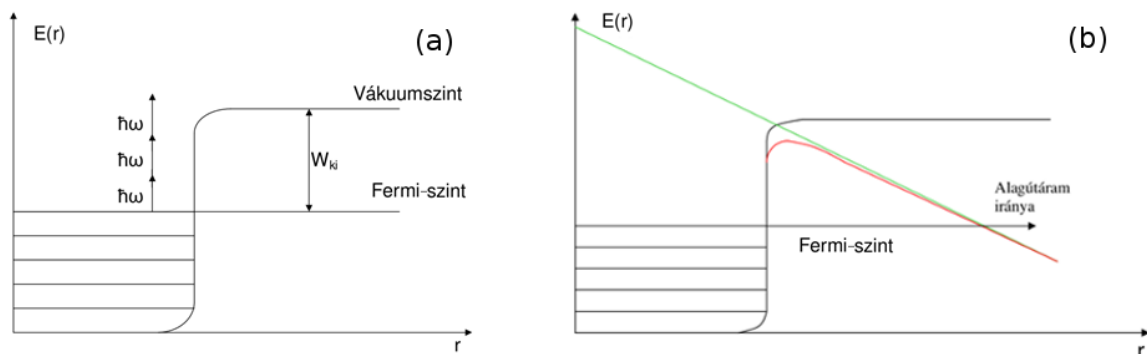
$$h\nu = W_{ki} + E_m, \quad (59)$$

ahol h jelenti a Planck-állandót, ν a fény frekvenciáját, W_{ki} a kilépési munkát, E_m pedig az elektron mozgási energiáját.

A lézerek megjelenésével, illetve az általuk szolgáltatott magas intenzitással azonban sikerült elektronemissziót megfigyelni olyan hullámhosszakon, ahol egy foton energiája nem fedezi a kilépési munkát. Az egyik ilyen folyamat a többfotonos emisszió [70,71], melynek során az elektron kilépési munkáját annyi foton fedezi, amennyi feltétlenül szükséges a kilépéshez. A folyamatot az

$$nh\nu = W_{ki} + E_m \quad (60)$$

egyenlet írja le, ahol n jelenti a fotoemisszióban részt vevő fotonok számát. A jelenségre jellemző, hogy az emisszió valószínűsége, és ebből adódóan a fotoáram nagysága is a megvilágító fény intenzitásának n -edik hatványával arányos ($j \sim I^n$). Egy másik többfotonos folyamat a küszöbfeletti fotoemisszió, mely során az elektron kilépését több foton biztosítja, mint amennyi az emisszióhoz minimálisan szükséges [15]. Még magasabb intenzitásértékek esetén lép fel az alagútemisszió [17,72], mely során az anyaggal kölcsönható fény olyan mértékben torzítja a fémfelületi potenciált, hogy az elektronok az alagúteffektus révén távoznak. Ugyan a magyar szakirodalomban a kapcsolódó jelenségek leírásakor elterjedt a "sokfotonos fotoemisszió" kifejezés is, de mivel fémek és a látható és közeli infravörös lézerek esetén a folyamat tipikusan 2-5-fotonos, ezért a továbbiakban a "többfotonos" jelzöt fogom használni.

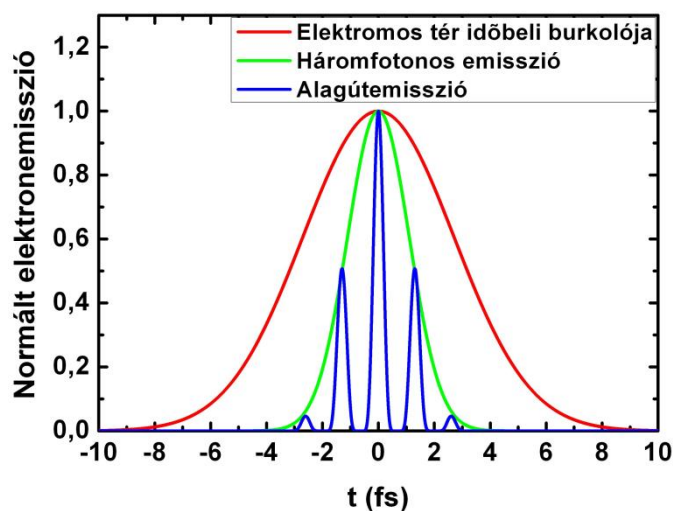


8. ábra: **(a)** Háromfotonos fotoemisszió fémek esetén. A kilépési munkát három foton energiája biztosítja. A külső lézertér itt még nem torzítja számottevően a fémfelületi potenciált. **(b)** Alagútemisszió fémek esetén. A zöld vonal jelöli a külső lézertér elektromos potenciáljárulékát, a fekete a fém lézertér nélküli, míg a piros görbe a lézertér által módosított eredő potenciált.

A fémekre több alagutazási formula ismert, mely megadja a fotoáram nagyságát az elektromos tér és így közvetve az intenzitás függvényében. Ezek közül az egyik a sztatikus térre vonatkozó közelítésből adódó Fowler-Nordheim formula [73],

$$j(t, x) = AE(t, x)^2 \exp\left(-\frac{B}{E(t, x)}\right) \quad (61)$$

ahol E jelenti az elektromos térerősséget, A illetve B pedig konstansok.



9. ábra: Egy 4,5 fs félértékszélességű impulzus elektromos terének időbeli burkolója, valamint a hozzá tartozó háromfotonos és alagútemisszióval kapcsolatos emissziós áram időfüggése.

A két folyamatot az ún. Keldis-féle skálaparaméterrel [74] lehet kvantifikálni.

$$\gamma = \left(\frac{\omega \sqrt{2mW_{ki}}}{eE} \right) \quad (62)$$

Itt ω jelenti a fény körfrekvenciáját, m és e az elektron tömegét és töltését, E pedig az elektromos térerősséget. Amikor $\gamma \gg 1$, akkor a többfotonos fotoemisszió dominál az elektronkibocsátási folyamatban, míg $\gamma < 1$ esetén tisztán az alagútemisszió a meghatározó. A Keldis-féle skálaparaméter felírható a kilépési munka és a későbbiekben ismertetendő ponderomotoros potenciál (65) függvényeként is.

$$\gamma = \sqrt{\frac{W_{ki}}{2U_p}} \quad (63)$$

A $\gamma \sim 1$ esetén az átmeneti tartományról beszélünk, ahol mindkét típusú folyamat járuléka jelentős, ami meglátszik a fotoáram időbeli lefutásában is [75]. A képletből az látszik, hogy többfotonos emisszió tipikusan nagyobb frekvenciákon és kisebb intenzitások mellett jöhet létre, míg az alagútemisszió kisebb frekvenciákon és nagyobb intenzitások esetén.

A Keldis-paraméterre kapott eredmények összhangban állnak Büttiker és Landauer ide vonatkozó elméleti megállapításaival [76], mely szerint $\gamma = \omega\tau$, ahol τ jelenti az alagutazáshoz szükséges időtartamot. E szerint az alagutazás jellemzően akkor mehet végbe, ha az alagutazáshoz tartozó idő számottevően kisebb a potenciál változásának periódusidejénél. Ez a tulajdonság lehetővé teszi az átmeneti tartomány [77,78] és erős terű folyamatok [79] vizsgálatát viszonylag alacsonyabb intenzitások mellett.

Az előbb említett jelenségek gázok ionizációs folyamataiban is analóg módon jelentkeznek [80-83], valamint még nagyobb intenzitásokon a gát feletti ionizáció is előállhat [84,85] melynek lényege, hogy az atomi potenciál olyan mértékben deformálódik, hogy az elektronok alagutazás nélkül, a potenciálgát fölött távozni tudnak. Ezek a jelenségek azonban kívül esnek a dolgozatban tárgyalt jelenségek körén.

A kapcsolódó jelenségek körében megemlítendő még a magasrendű felharmonikusok keltése is, melynek leírását szemléletesen a félklasszikus három lépéses modell adja meg [86]. Ilyenkor nemesgázatomokat megvilágítva az elektronok alagútmisszióval távoznak az atomból, a lézer elektromos terében gyorsulnak, majd amikor az elektromos tér előjelet vált, az elektron rekombinálódik az ionnal. A rekombinálódó elektronok az energiájukat egy nagyenergiás foton kibocsátása közben leadják. A jelenség érdekessége, hogy a keletkező foton frekvenciája megegyezik az eredeti gerjesztő lézertér frekvenciájának páratlan egész számú többszörösével. Mivel az így keletkező felharmonikusok fázisa időben szinkronizált, ezért egy nagyon rövid, attoszekundumos impulzus jöhet létre [14,87,88]. Mivel az elektronok atomi szintű mozgása is ebbe az időtartományba esik, ezért az ilyen fényforrásokat kihasználva létrejött az attoszekundumos spektroszkópia [89], melynek segítségével sikerült elektronok gyors átmeneteit időfelbontással megfigyelni gázokban [90] és szilárd testekben is [91]. A felharmonikuskeléssel analóg folyamatok megfigyelhetők szilárdtestekben is, azonban ezeknek a jelenségeknek a vizsgálata még a kezdeténél tart.

2.3 Elektron gyorsítás felületi plazmöntérben

Megmutatható, hogy egy elektronra az inhomogén oszcilláló elektromágneses térben

$$F_p = -\frac{e^2}{4m_e\omega^2} \nabla |\mathbf{E}_0|^2 \quad (64)$$

nagyságú erő hat [92], ahol e jelenti a részecske (ebben az esetben elektron) töltését, m a tömegét, ω az elektromágneses hullám körfrekvenciáját, \mathbf{E}_0 pedig az amplitúdóját. Itt az elektronra ható "átlagos", vagyis az oszcillációkat kiátlagoló, és a tér gradiensének irányába mutató erőről van szó. Ebből már származtatható az elektromágneses hullám terében levő töltött részecskére egy potenciál-jellegű mennyiség, amit ponderomotoros potenciálnak neveznek.

$$U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e\omega^2} \quad (65)$$

A korábbiakból tudjuk, hogy a felületi plazmonok fontos jellemzője a térnövekmény. Ez alapján az várható, hogy a felületi plazmon terében létrejövő elektrongyorsításnál fellépő elektronenergiák jóval meghaladják a gerjesztő fény ponderomotoros potenciáljából számoltakét. A következőkben bemutatom azt az alagutazási formulát is felhasználó klasszikus modellt [93], mely egy egyszerű és szemléletes fizikai képet ad a felületi plazmonok általi elektrongyorsításról, a lejátszódó folyamatokról. Ehhez a következő lépéseket kell figyelembe venni.

1. Első lépésben meg kell határozni a felületi plazmonok által keltett elektromágneses tér idő-, illetve térbeli eloszlását. Ez megtehető a Maxwell-egyenletek numerikus megoldásával [94], vagy egyszerűbb esetben a felületi plazmontér analitikus közelítésével is [95].

2. Ezt követően a felületen létrejött elektromágneses tér eloszlásának függvényében meg kell határozni az elektronemisszió tér- és időbeli eloszlását. Ehhez nyújt segítséget az egyes fotoemissziós tartományok jellemzőinek az ismerete, ld. a fotoemisszióról szóló alfejezetet.

3. Végül a fotoelektronok felületi plazmonok terében történő mozgását kell meghatározni a klasszikus mozgásegyenletének megoldásával. Megfelelő számú trajektória kiszámításával és súlyozásával lehetővé válik a várt elektronspektrum meghatározása is.

Feltételezve, hogy Kretschmann-becsatolást választunk, valamint gaussi gerjesztő lézerpulzust alapul véve, a felületi plazmonokról korábbiakban írtak alapján a felületi plazmontér [93,96] megfelelő komponenseire vonatkozó közelítő analitikus összefüggés felírható a,

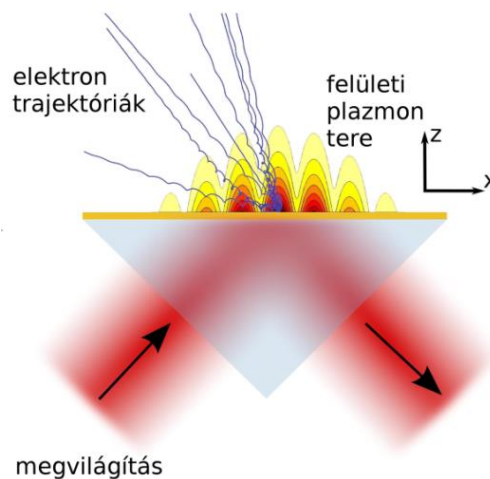
$$E_{plazmon}^z(x, z, t) = \eta E_{lézer} E_B(x, t) \cos(k_{plazmon}x - \omega t + \varphi_{VB}) \exp(-\alpha z) \quad (66)$$

$$E_{plazmon}^x(x, z, t) = \eta \alpha E_{lézer} E_B(x, t) \cos\left(k_{plazmon}x - \omega t - \frac{\pi}{2} + \varphi_{VB}\right) \exp(-\alpha z) \quad (67)$$

alakban is, ahol $E_{lézer}$, illetve E_B a megvilágító lézer amplitúdója és burkolója, φ_{VB} , illetve ω a lézer vivő-burkoló fázisa (carrier-envelope phase, CEP), valamint a lézer központi frekvenciájához tartozó körfrekvencia. Továbbá η és α a felületi plazmonteret jellemző térnövekmény és lecsengési együttható, valamint $k_{plazmon}$ a felületi plazmon hullámszámvektora, 'a' pedig egy paraméter, ami a felületi plazmon elektromos tér amplitúdóinak felülettel párhuzamos és arra merőleges komponenseinek hányadosát adja meg. Ezen paraméterre mindig igaz, hogy $a < 1$, és értéke a Maxwell egyenletek numerikus megoldása alapján 0,3-nak adódik [93,94]. A fotoemittált elektronok számát, és az elektrongyorsítás mértékét meghatározza a felületi plazmon elektromos tere, mely arányos a bejövő lézertérrel. Az elektronok gyorsítását felületi plazmontérben a Lorentz-egyenlet írja le:

$$m \frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} = -e \mathbf{E}_{SPP} + \mathbf{v} \times \mathbf{H}_{SPP} \quad (68)$$

Megfelelően kis elektronenergiák, vagyis nemrelativisztikus ($v \ll c$) esetben a mágneses tér hatása elhanyagolható, azonban az egyenlet megoldása még így is csak numerikusan lehetséges [95].



10. ábra: Felületi plazmonos elektronkeltés és elektrongyorsítás illusztrálása Kretschmann-konfiguráció esetén (forrás: [97]).

Megemlítendő az oszcilláló plazmontérben visszaszóródó elektronok hatása a kialakuló elektronspektrumokra. A jelenség lényege, hogy a plazmon elektromos tere fél periódusról fél periódusra előjelet vált, ami által az elektronok hol taszító, hol vonzó potenciálban mozognak. Emiatt a felülethez képest távolodhatnak, illetve közeledhetnek. Az ilyen módon lelassított, majd a felületről történő rugalmas ütközést nevezzük visszaszóródásnak, mely folyamat által ezen elektronok energiája jelentősen, akár ötszörösére is megnövekszik a nem visszaszórtakéhoz képest [16,79,98,99].

2.4 A felületi plazmonos fotoemisszió és elektrongyorsítás kísérleti előzményei

Habár a felületi plazmonok által erősített elektronemisszió jelenségét már az 1970-es években is vizsgálták [100-102], az erősítési tényező, a kvantumhatásfok kvantitatív kimérése az 1990-es évek elejéig váratott magára [49-51]. Több fémről, pl. ezüst, arany, alumínium, réz esetén legtöbbször Kretschmann elrendezésben vizsgálták meg a fotoemissziót. Ennek során azt találták, hogy plazmonkeltés jelenlétében azonos intenzitások mellett a fotoáram 50-5000-szer nagyobb az ugyanezen fémfelületek egyszerű megvilágításával kapottnál. A fotoemissziós hatásfok növelésének mértéke függ a fém fajtájától, az 50-szeres erősítést alumínium, míg az 5000-szerest ezüstről mérték. A jelenséget egyértelműen a felületi plazmonok térnövekményével magyarázhatjuk.

Felületi plazmonokkal lehetőség nyílik nem csak a fotoemisszió hatásfokának növelésére, hanem az emittált elektronok gyorsítására is felületi plazmonok evaneszcens terében [52-55,103]. A kétezres évek elején kezdődött meg a felületi plazmonos elektrongyorsítás kísérleti vizsgálata. A Zawadzka és munkatársai által végzett kísérletekben Kretschmann konfigurációban, 800 nm központi hullámhosszú és 150 fs impulzushosszúságú Ti:zafír lézerrel, 50 nm vastagságú ezüst illetve arany rétegekről vizsgálták a jelenséget, melynek során

40 eV energiával rendelkező elektronokat detektáltak 21 GW/cm^2 intenzitás mellett [52]. Ugyanezzel a kísérleti elrendezéssel lényegesen magasabb intenzitás, 40 TW/cm^2 mellett 0,4 keV energiával rendelkező elektronokat is sikerült kimutatniuk [53].

Kupersztych és munkatársai [54] szintén Ti:zafir lézert használva 800 nm-es központi frekvencián, diffrakciós ráccsal történő becsatolást használva, valamint 200 nm vastag arany rétegen végeztek két mérési sorozatot. Az egyik sorozatnál az intenzitás függvényében, míg a másikonál az alkalmazott lézerimpulzushosszak függvényében mérték ki az elektronok spektrumát. Így sikerült 60 fs-os impulzushossz és 8 GW/cm^2 intenzitás mellett 25 eV-os elektronnyalábot, valamint $3,2 \text{ GW/cm}^2$ intenzitás és 800 fs-os impulzushossz mellett 40 eV energiával rendelkező elektronokat detektálniuk.

Az Irvine és munkatársai által végzett kísérletekben Ti:zafir oszcillátort használva, Kretschmann becsatolást alkalmazva, 50 nm-es ezüstrétegen, 27 fs-os impulzushossz és $1,8 \text{ GW/cm}^2$ intenzitás mellett sikerült 0,4 keV-os elektronokat előallítaniuk [55]. Ugyanennek a kutatócsoportnak sikerült kimutatnia 2 keV energiával rendelkező elektronokat 50 nm arany illetve ezüst rétegeket használva 30 GW/cm^2 intenzitás mellett, Kretschmann becsatolással, 800 nm hullámhossz mellett (többutas Ti:zafir erősítő alkalmazásával) [103]. Ezen felül meghatározták a keletkező elektroncsomag keletkezésének időbeli lefutását, melynek időtartamára $\leq 100 \text{ fs}$ adódott.

2.4.1 Fotoemisszió érdes felületekről

Mint azt a korábbiakban már láttuk, a felületi plazmonok fontos szerepet játszanak az elektronemisszió létrejöttében, illetve a már fotoemittált elektronok gyorsításában. Ez alapján a fény felületi plazmonokká történő becsatolásának hatásfoka nagy hatással van a fotoemisszióra [79]. Aktív vizsgálatok tárgyát képezi továbbá a felületi plazmon polaritonok és a lokalizált felületi plazmonok közti kölcsönhatás is [104-106], melynek fontos szerepe lesz az

általam elvégzett kísérletek megértésében. Ezen kísérletekben a felületi érdesség is fontos szerepet játszik, nagymértékben befolyásolva mind a vékonyrétegek [24,107-109], mind a nanorészecskék optikai tulajdonságait [110,111], valamint több erős-tér folyamatra is hatással van. Kimutatták, hogy a felületi érdesség elmosza a felületeken létrejövő plazmonikusán erősített fotoemisszió vivő-burkoló fázistól (CEP) való függését [112], valamint igazolták, hogy az ilyen felületekre jellemző térerősítés következménye nagyobb energiájú elektronok detektálása, az alagútemissziós tartomány elérése viszonylag alacsonyabb lézertenzitások mellett, vagy a megnövekedett fotoemissziós ráta [79,113,114]. Ezen felül kísérletekkel vizsgálták a polarizációfüggő elektronemisszió tulajdonságait érdes felületekről [115], melynek során azt találták, hogy a polarizáció 90° -os megváltoztatásával az elektronemisszió mértékében 100-szoros különbség is fellép. Ennek okát az érdes felületen kialakuló lokalizált módusok polarizációfüggésének tudták be.

3. Célkitűzés

A felületi plazmonokkal kapcsolatban jelentős érdeklődés tapasztalható a lehetséges alkalmazások iránt, valamint alapkutatói irányból is a lezajló folyamatok és a mögöttes fizikai jelenségek jobb megértését illetően. A felületi plazmon polaritonok, valamint a lokalizált felületi plazmonok kísérleti vizsgálatát a modern anyagmegmunkálási lehetőségek, a vékonyrétegek, vagyis a nm-es vastagsággal bíró fémfelületek [116] és a kontrolláltan nm-es tartományban létrehozható részecskék [117,118] tették lehetővé. A lézertechnika, illetve az impulzusüzemű lézerek fejlődése által lehetővé vált ezen jelenségek vizsgálata az ultragyors, akár a kevés optikai ciklusnak megfelelő időtartományban [114,119] is. A felületi plazmonokkal kapcsolatos kutatások egyik jelentős ága a felületi plazmonok által indukált elektronemisszió, illetve elektrongyorsítás, a disszertációm tárgyát is ezen vizsgálatok adják.

A következő fejezetben ismertetem azokat a módszereket, eljárásokat, valamint kísérleti elrendezéseket, melyeket a kutatások során felhasználtam, majd rátérek a saját tudományos eredmények ismertetésére. Ennek keretében célul tűztem ki a felületi érdesség hatásának vizsgálatát a plazmonikusan keltett és gyorsított fotoáram tulajdonságaira vonatkozóan. Ennek érdekében méréseket végeztem, melyek során a már említett fémfelületeket különböző intenzitású ultrarövid fényimpulzusokkal világítottam meg, majd a kapott elektronspektrumokat a fém vékonyrétegek érdességének függvényében elemeztem.

Célul tűztem ki továbbá egy modell megalkotását, mellyel értelmezhetővé válik a felületi érdességnek az elektronenergiára gyakorolt hatása. Ehhez először a fémfelületeken elhelyezkedő szemcséket atomi erő mikroszkópos felvételek segítségével lemértem, majd méreteloszlást készítettem. Feltételeztem továbbá, hogy e felületi érdesség jól közelíthető kéttengelyű ellipszoidokkal, melyek közelében viszonylag könnyen kiszámolható a kialakuló plazmon elektromos tere kvázisztatikus közelítésben. Mivel a különböző fémfelületekhez

különböző méreteloszlások tartoznak, így a kialakuló elektromos terek is különböző nagysággal rendelkeznek (ld. 4.3 alfejezet), ami befolyásolja az elektronspektrumok tulajdonságait is a korábbiakban leírtak alapján. A kísérleti és elméleti kutatások célja volt a felületi plazmonok általi elektronemisszió és elektrongyorsítás felületi érdesség és intenzitásfüggő tulajdonságainak feltárása, melynek során a kísérleti eredményeket modellszámításokkal támasztom alá. Ezen felül céлом volt a nanorészecskékről keltett, vivő-burkoló fázisfüggő fotoemisszió tulajdonságainak vizsgálata plazmonikusan rezonáns, illetve nemrezonáns részecskék esetén modellszámítások segítségével. Ennek kapcsán tanulmányoztam a fotoemittált elektronok energia, illetve szög szerinti eloszlásának tulajdonságait a vivő-burkoló fázis függvényében, különös tekintettel a nagy energiával rendelkező elektronokra. Az eredmények alapján arra a kérdésre vártam választ, hogy mely feltételek megléte esetén várható a fotoemisszió legnagyobb fázisérzékenysége.

Célul tűztem ki továbbá nanorészecskék közelében történő elektrongyorsítás, valamint a nanostrukturált felületen keltett THz-es sugárzás közti kapcsolat kísérleti vizsgálatát, melynek során egy nanorészecskemintázatról vizsgáltam a fotoelektronok teljes beütésszámának intenzitásfüggését, és összevettem azt az ugyanezekről a felületekről keltett THz-es sugárzással. Ezzel a méréssel céлом volt a plazmontérben gyorsuló elektronok, valamint a nanorészecskéken keltett THz-es sugárzás kapcsolatának tisztázása.

4. Módszerek és alkalmazott eljárások

Ebben a részben egy átfogó képet szeretnék nyújtani a kísérleti összeállításról az alkalmazott lézerrendszer ismertetésétől kezdve az elektronok detektálásán keresztül, a minták előállításának módszeréig, kitérve a főbb fizikai jelenségekre, valamint folyamatokra, melyek a jobb megértést hivatottak segíteni.

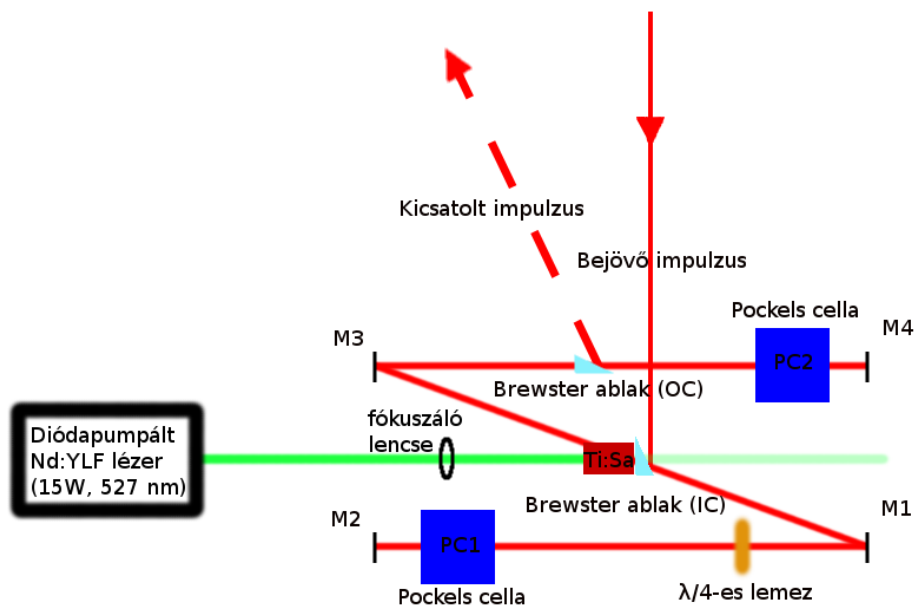
4.1 A mérések kivitelezése és a kísérleti elrendezés bemutatása

4.1.1 A femtoszekundumos fényforrás és impulzuskarakterizálás

Az általam elvégzett kísérleteket egy Coherent Inc. által gyártott Legend Elite típusú regeneratív lézerezősítő-rendszerrel, illetve egy házi építésű hosszú rezonátoros lézeroszcillátor segítségével valósítottam meg, melyek az MTA Wigner Fizikai Kutatóközpontban álltak a rendelkezésemre.

A regeneratív erősítő lézerrendszer a kimenetén 1 kHz ismétlési frekvenciával, 800 nm hullámhossz mellett, 4 W teljesítménnyel üzemelt, az általa biztosított impulzushossz kb. 40 fs, az impulzusenergia pedig 4 mJ volt. Természetesen a viszonylag nagy impulzusenergiának és rövid impulzushossznak köszönhetően, valamint a felületi plazmonok vizsgálatához szükséges viszonylag alacsonyabb intenzitások miatt nem volt szükségem a teljes nyaláb energiájára. A kísérleteket jóval kisebb, jellemzően néhány nJ-tól a tized μJ -ig terjedő lézerimpulzus energiákon végeztem el. A mintára eső nyaláb energiájának szabályozását szélessávú (femtoszekundumos) nyalábosztókkal, valamint szűrkeszűrővel, illetve változtatható szűrővel végeztem. Az ilyen módon gyengített nyaláb végül fókuszálás után a mintára érkezett, ami nanostrukturált mintát, vagy prizmára párologtatott vékony fémréteget jelent (Kretschmann

becsatolás, ld. felületi plazmon polaritonokról szóló alfejezet). Az erősítőrendszer magimpulzusait egy Ti:zafír lézeroszcillátor szolgáltatja, mely módusszinkronizálva 80 MHz ismétlési frekvencia mellett bocsátott ki kb. 4 nJ energiájú impulzusokat. Ezen impulzusok továbbjutnak az erősítőbe, melyben az oszcillátorhoz hasonlóan egy Ti:zafír kristály helyezkedik el.



11. ábra: Az alkalmazott regeneratív lézererősítő sémája. A bejövő impulzusok a 80 MHz ismétlési frekvenciával rendelkező lézeroszcillátorból származnak. Az erősítés során az oszcillátorból függőleges polarizációval érkező fény a Ti:zafír kristály mellett levő (IC) Brewster ablakon az M1 tükörrre reflektálódik. Az itt levő Pockels cella megfelelő időben történő be és kikapcsolásával elérhető a nyaláb polarizációjának változtatása, amivel az erősíteni nem kívánt impulzusok a Brewster ablakról visszareflektálódnak, valamint az erősítendő impulzusok az erősítőben maradnak. Kicsatolás alkalmával PC2 bekapcsol, ami miatt az ezen elemen létrejövő polarizációváltozás végett a kicsatoló Brewster ablak (OC) reflektálni fog, a nyaláb pedig elhagyja a rezonátort.

Az erősítő kristályában a populációinverziót egy Q-kapcsolt szilárdtest lézer (Nd:YLF) állította elő, melynek hullámhossza frekvenciakétszerezés után 527 nm volt. A Q kapcsolás ismétlési frekvenciája 1 kHz. A regeneratív erősítés során az oszcillátorból jövő impulzust több ps-ra megnyújtják, hogy az erősítő kristályában kisebb intenzitások lépjenek fel, megelőzve az

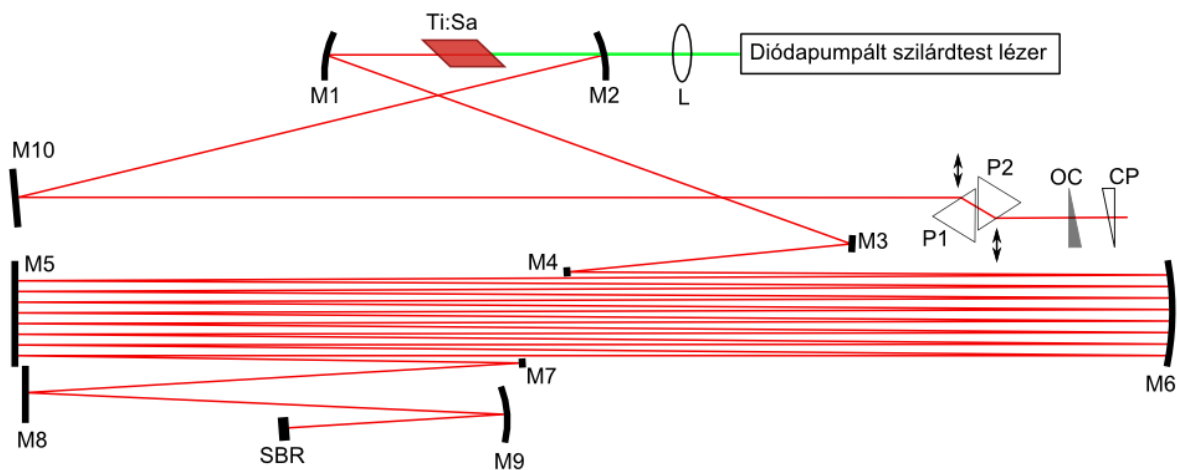
optikai elemek roncsolódását. Ezt követően az erősítendő impulzus többször is áthalad az erősítő Ti:zafir kristályán, melynek során a lézerimpulzusok kb. 6 nagyságrendet erősödnek. Ez után az impulzust diffrakciós rácsokkal összenyomva előállnak a fentiekben már említett lézerimpulzus-paraméterek.

Az erősítés menete a következő. Első lépésben az oszcillátorból függőleges polarizációval érkező fény a Ti:zafir kristály mellett levő (IC) Brewster ablakon a M1 tükörré reflektálódik. Az itt levő Pockels cella nincs bekapcsolva, így a $\lambda/4$ -es lemezen történő kétszeri áthaladás után a nyaláb polarizációja 90° -ot elfordul, aminek hatására a nyaláb a (IC) Brewster ablakon áthalad. A PC1 Pockels cella ezután bekapcsol, aminek kettős funkciója van. Egyfelől elérhető, hogy az erősíteni nem kívánt impulzusok visszareflektálódjanak, amit később egy Faraday izolátor szűr ki. Másfelől az erősítendő impulzus is benn marad a rendszerben, mivel a PC1 és a $\lambda/4$ -es lemezen való kétszeres áthaladás után a polarizáció 180° -ot fordul. Mindeközben a PC2 kikapcsolva marad, míg a nyaláb többször is áthalad az erősítő kristályán. Kicsatolásnál viszont PC2 bekapcsol, ami miatt az ezen elemen létrejövő polarizációváltozás végett a kicsatoló Brewster ablak reflektálni fog, a nyaláb pedig elhagyja a rezonátort. Az eddigiekben említett elemek szinkronizációjáért a lézerrendszerhez tartozó vezérlőelektronika a felelős, mely a megfelelő időzítést az oszcillátorból kijövő nyaláb monitorozásával éri el.

A másik általam használt fényforrás a hosszú rezonátoros lézeroszillátor volt. Módusszinkronizált lézer esetén a lézerimpulzusok ismétlési frekvenciáját a lézer rezonátorának hossza szabja meg. Minél hosszabb a rezonátor, a lézer ismétlési frekvenciája annál alacsonyabb, míg az impulzusenergia annál nagyobb lesz (közel változatlan átlagteljesítmény mellett). Az oszcillátor erősítő közege a 3 mm vastag Ti:zafir kristály, melynek a pumpálását egy 10 W teljesítménnyel rendelkező diódapumpált szilárdtestlézer biztosítja. A rezonátor körüljárási hossza jelen esetben 80 m volt, ami módusszinkronizált működés mellett 3,6 MHz ismétlési frekvenciát tesz lehetővé. Az oszcillátor egyik végtükre

egy 20% áteresztőképességgel rendelkező kicsatolótükör, míg a másik végtükör egy Bragg reflektor, melynek a stabil módusszinkronizáció létrejöttében, valamint beindításában van szerepe. Az így kialakuló lézerimpulzusok energiája 220 nJ, az impulzushosszuk 1,5 ps.

A rezonátoron kívül elhelyezkedő impulzusösszenyomó rácsok a lézerimpulzusokat kb. 95-110 fs félértékszélességűre nyomják össze. Az elektrooptikai (Pockels-cellára épülő) impulzuskivágó feladata alacsonyabb, jelen esetben 4,5 kHz ismétlési frekvenciával rendelkező nyaláb előállítás. Ezt követően történik a nyaláb szűrőkkel megfelelő teljesítményűre történő állítása, valamint a céltárgyra történő lefókuszálás.



12. ábra: A hosszú rezonátoros lézer felépítése. SBR jelöli a telítődő Bragg reflektort, valamint OC a kicsatolótükört. Az M1-M9 tükröket jelent, ahol M1, M2 dikroikus tükrök. Az M4-M7 funkciója a lézerszcillátor körüljárási hosszának megnövelése 80 m-re, valamint M8 egy erősen diszperzív tükör a diszperzió kompenzálására. (forrás: [120])

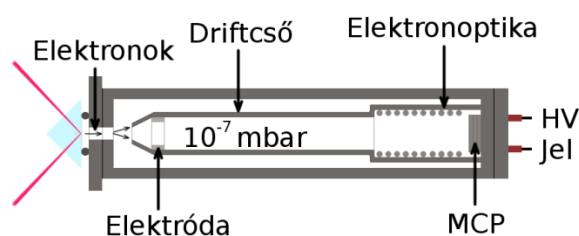
Az egyes mérésekben szereplő intenzitás adatok becsléséhez nélkülözhetetlen az alkalmazott lézerimpulzusok hosszának és időalakjának ismerete. Az általam végzett mérésekhez autokorrelátort használtam. Mérés alkalmával az ultrarövid lézerimpulzust kettéválasztjuk, majd újraegyesítve lefókuszáljuk egy másodharmonikuseltő kristályba. Az intenzitás autokorreláció, vagyis a keletkező másodharmonikus jel az optikai késleltetés függvényében a

$$A^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t - \tau)dt \quad (69)$$

alakban megadható, melyből a lézernyaláb impulzushossza jó közelítéssel meghatározható.

4.1.2 A repülési idő spektrométer

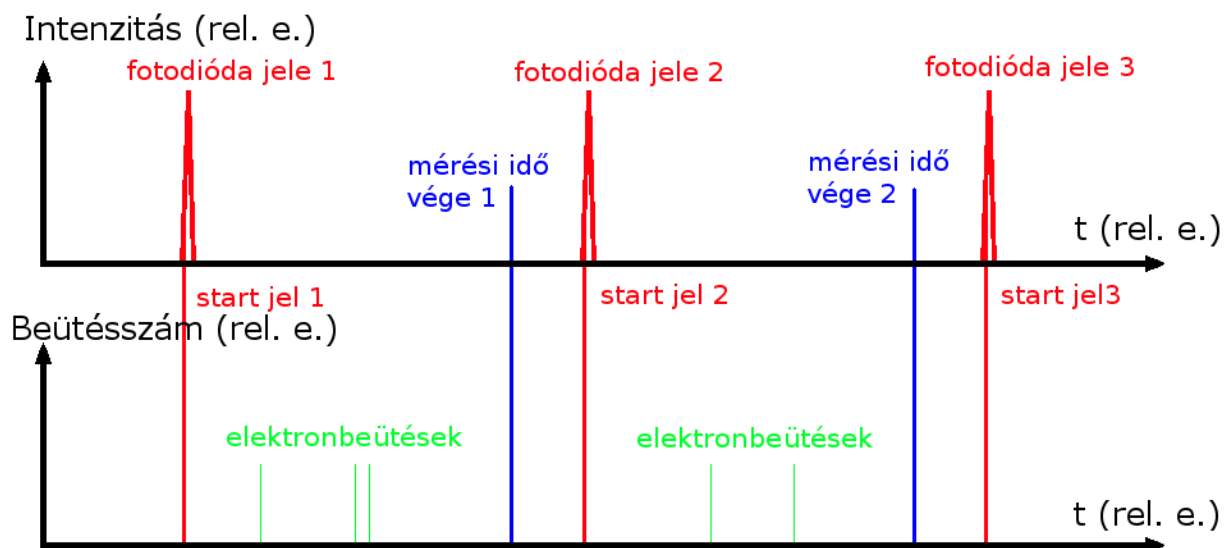
A minták egy vákuumkamrán (vákuumablakként) helyezkednek el, a kamrán belül található meg a repülési idő spektrométer (time-of-flight spectrometer, TOF). A spektrométer nélkülözhetetlen eleme a driftcső, melyben a mintáról fotoemittált elektronok az útjukat folytatják. A repülési cső hossza az általam használt TOF esetében 48 cm volt, a műszer az 5 eV-1 keV energiával rendelkező elektronok detektálását tudja a leghatékonyabban elvégezni. Ennek az az oka, hogy a Föld mágneses tere erősen eltéríti a legalacsonyabb energiájú elektronokat és ezt a hatást a μ -metál anyagú driftcső sem tudja elhanyagolhatóvá tenni, mely anyag a magas permeabilitásának köszönhetően kiválóan alkalmas a mágneses terek leárnyékolására [121].



13. ábra: A repülési idő spektrométer vázlatos rajza. Feltüntettem a megvilágító nyalábot, valamint a vákuumablakként is szolgáló mintát. Az elektronok a vákuumcsőben folytatják útjukat, a detektálást elősegíti az elektronoptika használata. A repülési cső végén található a mikrocsatornás lemez az elektronok detektálására.

A driftcső végében az elektronok érzékelésére szolgáló mikrocsatornás lemez detektor (MCP, microchannel plate) található. A driftcső tulajdonképpen egy vákuumcső, melyben 10^{-6} - 10^{-7} mbar nyomás uralkodik az elektronok akadálymentes repülése, valamint az MCP megóvása céljából. Az elektronok keletkezésének idejét (az őket keltő lézerimpulzus érkezését) ismerve megmérhető az az idő, amíg az elektronok a céltárgyról a detektorig eljutnak. Az

elektronok fémből történő kilépésének idejét, az ún. start jelet egy fotodióda szolgáltatja, mely a mintáról reflektált lézerimpulzust érzékeli. Ezt követően megkezdődik az elektronok detektálása egy adott időintervallumon belül, melynek hossza beállítható (ld. 14. ábra). Két, időben egymáshoz legközelebb álló start jel közötti időintervallum ad egy mérési ciklust, amelyen belül tipikusan 0-15 közt számú elektronbeütés idejét regisztrálja a berendezés. A mérési ciklust több százezerszer megismételve, a beütések időbeli eloszlásából származtatható a repülési idő spektrum, ebből pedig a megfelelő, gyártói kalibrációs görbék felhasználásával az elektronok energiaspektruma adódik.



14. ábra: A repülési idő spektrométerrel történő mérés menete. Felül látható a mintáról visszavert lézernyaláb beérkezésekor a fotodióda által szolgáltatott startjel, amely egyidejű a fotoemisszió időpillanatával. Az elektronok detektálására a lézerimpulzus beérkezésétől számítva egy adott időintervallum áll rendelkezésre, melynek vége beállítható. Alul láthatók az egyes mérési ciklusokon belül regisztrált elektronbeütések.

Mivel a beütések regisztrálásának időbeli felbontása 100 ps, ez határt szab az eszköz spektrális felbontóképességének is, ami a nagyobb elektronenergiák felé haladva relatíve kisebb felbontóképességet jelent. A keletkező elektronok begyűjtési hatásfokának megnövelésére szolgálnak a mérőműszeren belüli elektronoptikai elemek, melynek hatására az elektronok begyűjtésének térszöge megnő a már említett elektronoptikai elemre kapcsolt feszültség

függvényében. Az elektronok detektálásának gyorsítása érdekében a driftcsőre is kapcsolhatunk gyorsítófeszültséget, aminek különösen akkor van jelentősége, ha el akarjuk kerülni az elektronok átlapolódását, vagyis azt, hogy az egyik impulzus által keltett lassú elektronokat ne a következő impulzus által keltett gyors elektronokként detektáljuk. Ezen probléma kiküszöbölésének másik módja a megfelelően megválasztott, vagyis nem túl magas (tipikusan 100 kHz alatti) ismétlési frekvenciával rendelkező lézerimpulzus-vonulat használata a mérések során, mellyel kellő idő biztosítható az egy adott optikai cikluson belül keletkező elektronok detektálásához. Természetesen a különböző feszültségek hatással vannak a repülési idő spektrumokra, melyet az energiaspektrumok számolásánál figyelembe kell venni különböző gyártói kalibrációs görbék felhasználásával.

4.2 A minták előállítása

Az kísérleteim során alkalmazott fémfelületi struktúrák előállításához nélkülözhetetlen valamilyen nanofabrikációs eljárás alkalmazása. A vékonyrétegek előállításának bevett módja az elektronsugaras párologtatási eljárás [116], míg a nanométer méretű anyagok, illetve mintázatok létrehozására számos (nano)litográfiai eljárás létezik [117]. A nanooptikai kísérletekben a nanostruktúrált minták előállításának elterjedt módszerei az elektronsugaras, illetve nanogömb litográfia. Az elektronsugaras litográfia lényege a megfelelő mintázat kialakítása elektronsugár segítségével. Ezen eljárás előnye a jó felbontóképesség, azonban az általam elvégzett kísérletekben a minták előállítása nanogömb litográfiával történt.

4.2.1 Elektronsugaras párologtatás

Az elektronsugaras párologtatási eljárás a vékonyrétegek előállításának széles körben alkalmazott módszere. Lényege abban áll, hogy egy adott anyagot elektronnalábbal párologtatnak [116], ami később eljut a szubsztrátra, ahol aztán lecsapódva vékonyréteget képez. A folyamat megfelelő véghezviteléhez nélkülözhetetlen megfelelő vákuum biztosítása,

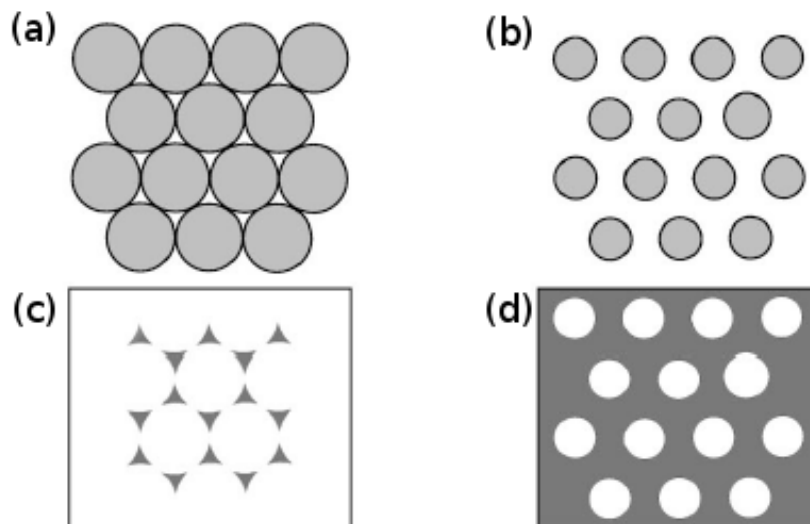
mely jellemzően 10^{-5} - 10^{-6} mbar. Az elektronnyalábot előállító elektronágyú része a katód, illetve anód, melyre feszültséget kapcsolva (jellemzően 10-40 kV) biztosíthatjuk az elektronok energiáját. Az elektronokat nyerhetik izzókatódból, valamint plazmából is. Az előbbi lényege a termoemisszió vagyis, hogy a kellően magas hőmérsékletre felmelegített anyagból elektronok lépnek ki. Az utóbbi megvalósítható hidegkatódos plazmaágyúval. A megfelelő eredmény kialakításához a párolgási folyamat során szükséges ismerni a szubsztrátra már rápárolgott rétegvastagságot, amelyet legtöbbször rezgőkvarccal mérnek.

4.2.2 Nanogömb litográfia

A nanogömb litográfia [118,122,123] (nanosphere lithography, NSL) kifejlesztése 1981-re tehető amikor Fischer és Zingsheim [124] először használtak önszerveződő, 312 nm átmérővel rendelkező nanogömböket platina nanomintázat kialakításához, melyet a szubsztrátra való párolgatással kaptak meg.

A nanogömb-litográfia előnyei között említhető meg, hogy gyorsan lehet vele preparálni nagyobb méretű ($\sim 1 \text{ cm}^2$) felületeket, nem igényel bonyolult műszereket, valamint költséghatékony. Megjegyzendő azonban, hogy ez a módszer csak periodikus struktúrák előállítására alkalmas, azonban bizonyos módszerek alkalmazásával ezen mintázat kialakítása befolyásolható. Az eljárás során először fel kell vinni egy szubsztrátra az önszerveződött nanogömb réteget, amire több megoldás létezik, pl. a Langmuir-Blodgett módszer [118], melynek során a folyadék felszínén önszerveződött monoréteg létrejöttkor a szubsztrát oldatból történő kiemelésével létrejön a kívánt nanogömb réteg. A kiemelés során egy gát a folyadék felszínén levő monoréteg összenyomásával biztosítja a felületen levő részecskék sűrűségének szinten tartását, amivel biztosítható a szubsztráton létrejövő nanogömb réteg egyenletessége. Egy másik módszer lényege, hogy a szubsztrát felületére felvisznek nanogömböket tartalmazó oldatot. Ilyenkor a nanogömbök az oldat felszínén képeznek réteget,

majd az oldat elpárolgásával a szubsztrát felületére képződnek rá. Ezt a fémréteg párologtatása követi a szubsztrátra, mely a nanogömbök és szubsztrát közötti teret kitölti. A nanogömbök eltávolításával létrejön a szabályos hatszögű rácsba rendezett háromszög alakú nanorészecske mintázat. A nanostrukturamintázat megváltoztatásának egy jól bevált módja a párologtatás előtt a szubsztráton már meglévő és zárt, szabályos hatszög alakba rendeződött nanorészecskék maratása, az ún. reaktív ionmarás (reactive ion etching, RIE) [125,126]. Ilyenkor a nanogömb mérete csökken, aminek a következményeként nem egyedi nanorészecskéket, hanem egy összefüggő mezőt lehet előállítani, melyekben szabályosan lyukak helyezkednek el.



15. ábra: Nanogömb litográfias eljárásnál létrehozott önszerveződött nanogömb réteg (a), valamint az eljárás során létrehozott hatszögletű mintázat (c). Jobb oldalon látható az önszerveződés után módosított méretű nanogömbök (b), illetve a párologtatás után nyert mintázat (d) (forrás: [126]).

4.3 Ellipszoidális nanorészecskéken keltett plazmonok modellezése

Ebben a fejezetben mutatom be a modellszámításokhoz kapcsolódó elméleti megfontolásokat [56,61], vagyis az ellipszoidális részecskéken keltett felületi plazmonokat, mely egy analitikusan kezelhető elektromágnességi probléma. Ennek lényege Bohren, illetve

Huffman gondolatmenetét követve [61], hogy kvázisztatikus esetben a Laplace egyenlet egzaktul megoldható nem csak gömb, de ellipszoid esetén is, mely lehetővé teszi az ilyen alakú részecskék polarizálhatóságának analitikus megadását. Egy ellipszoidot a főtengelyeivel jellemezhetünk (a_1, a_2, a_3) , így az ellipszoid felületét az

$$\frac{x^2}{a_1^2} + \frac{y^2}{a_2^2} + \frac{z^2}{a_3^2} = 1 \quad (70)$$

egyenlet írja le. Tegyük fel továbbá, hogy $a_1 > a_2 > a_3$. A rendszer vizsgálata legegyszerűbben az ellipszoidális koordinátarendszerben tehető meg, mely az

$$\frac{x^2}{a_1^2 + \xi} + \frac{y^2}{a_2^2 + \xi} + \frac{z^2}{a_3^2 + \xi} = 1 \quad (71)$$

$$\frac{x^2}{a_1^2 + \eta} + \frac{y^2}{a_2^2 + \eta} + \frac{z^2}{a_3^2 + \eta} = 1 \quad (72)$$

$$\frac{x^2}{a_1^2 + \zeta} + \frac{y^2}{a_2^2 + \zeta} + \frac{z^2}{a_3^2 + \zeta} = 1 \quad (73)$$

alakban definiálható, amire fennáll a $-a_1^2 < \zeta < -a_2^2 < \eta < -a_3^2 < \xi < \infty$ feltétel. A továbbiakban feltételezzük, hogy az elektromos tér az ellipszoid egy adott nagytengelyének irányába mutat, vagyis kvázisztatikus közelítésben a beérkező elektromágneses hullám polarizációja ezzel párhuzamos. A határfeltételek alapján a perturbáló (a nanoellipszoidon a külső tér hatására létrejövő töltéselrendezés miatti) potenciál a végtelenben eltűnik, valamint a részecske felületén a potenciál folytonos.

$$\nabla^2 \Phi = (\eta - \zeta)f(\xi) \frac{\partial}{\partial \xi} \left[f(\xi) \frac{\partial \Phi}{\partial \xi} \right] + (\zeta - \xi)f(\eta) \frac{\partial}{\partial \eta} \left[f(\eta) \frac{\partial \Phi}{\partial \eta} \right] + (\xi - \eta)f(\zeta) \frac{\partial}{\partial \zeta} \left[f(\zeta) \frac{\partial \Phi}{\partial \zeta} \right] = 0 \quad (74)$$

ahol

$$f(q) = \sqrt{(q + a_1^2)(q + a_2^2)(q + a_3^2)} \quad (75)$$

Ezekből, valamint a Laplace egyenlet ellipszoidális koordinátarendszerbeli (74) alakjának megoldásával meghatározható a részecskén belüli, illetve a perturbáló potenciál is:

$$\phi_1 = \frac{\phi_0}{1 + \frac{L_i(\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m)}{\varepsilon_m}} \quad (76)$$

$$\phi_p = \phi_0 \frac{\frac{a_1 a_2 a_3}{2} \frac{(\varepsilon_m - \varepsilon(\omega))}{\varepsilon_m} \int_{\xi}^{\infty} \frac{dq}{(a_i^2 + q)f(q)}}{1 + \frac{L_i(\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m)}{\varepsilon_m}} \quad (77)$$

Itt L_i egy geometriai együttható, mely kifejezhető az

$$L_i = \frac{a_1 a_2 a_3}{2} \int_0^{\infty} \frac{dq}{(a_i^2 + q)f(q)} \quad (78)$$

összefüggéssel, ahol ($i=1,2,3$) mutatja a beeső tér polarizációját valamelyik főtengely mentén.

Megmutatható, hogy az ellipszoidtól kellően nagy távolságra, vagyis jóval távolabbra, mint az ellipszoid leghosszabb főtengelye, a (77) egyenletben szereplő integrál felírható az

$$\int_{\xi}^{\infty} \frac{dq}{(a_i^2 + q)f(q)} \cong \int_{\xi}^{\infty} \frac{dq}{q^{\frac{5}{2}}} = \frac{2}{3} \xi^{-\frac{3}{2}} \quad (79)$$

alakban, a perturbáló potenciál pedig a

$$\Phi_p \cong \frac{E_0 \cos \theta}{r^2} \frac{\frac{a_1 a_2 a_3}{3} \frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m}{\varepsilon_m}}{\frac{L_i(\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m)}{\varepsilon_m}} \quad (80)$$

kifejezéssel közelíthető, melyből a dipólmomentum is kiszámolható:

$$\mathbf{p} = 4\pi \varepsilon_m a_1 a_2 a_3 \frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m}{3\varepsilon_m + 3L_i(\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m)} \mathbf{E}_0 \quad (81)$$

A polarizálhatóság egy adott tengely mentén felírható az

$$\alpha_i = 4\pi a_1 a_2 a_3 \frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m}{3\varepsilon_m + 3L_i(\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m)} \quad (82)$$

alakban. Vegyük észre, hogy gömb esetében a három főtengely nagysága megegyezik, a depolarizációs faktorok pedig az

$$L_1 = L_2 = L_3 = \frac{a^3}{2} \int_0^\infty \frac{dq}{(a^2+q)^{\frac{5}{2}}} = \frac{1}{3} \quad (83)$$

eredményt adják, amit visszahelyettesítve a (82) képletbe, visszakapjuk a gömb polarizálhatóságát megadó (48) egyenletet.

További speciális esetet jelentenek az ún. forgási ellipszoidok, melyeknél a 3 főtengelyből 2 egyforma hosszúsággal rendelkezik. Itt két típust különböztethetünk meg. Az első csoport képviseli a szivar alakú szferoidokat, ahol a két rövidebb főtengely hossza egyezik meg ($a_2=a_3$). Megmutatható, hogy ebben az esetben a geometriai faktor a leghosszabb főtengely mentén a

$$L_1 = \frac{1-e^2}{e^2} \left(-1 + \frac{1}{2e} \ln \frac{1+e}{1-e} \right) \quad (84)$$

kifejezéssel lesz egyenlő, ahol $e = \sqrt{1 - \frac{a_2^2}{a_1^2}}$ az ellipszoid excentricitása. A másik csoport a lencse alakú szferoidoké, mely esetben a két hosszabb tengely hossza egyezik meg ($a_1=a_2$), és a forgási ellipszoid rendelkezik még egy, rövidebb nagytengellyel is (a_3). Ilyenkor a geometriai együttható

$$L_1 = \frac{g(e)}{2e^2} \left[\frac{\pi}{2} - \tan^{-1} g(e) \right] - \frac{g^2(e)}{2} \quad (85)$$

lesz, ahol $e = \sqrt{1 - \frac{a_3^2}{a_1^2}}$, valamint $g(e) = \left(\frac{1-e^2}{e^2} \right)^{\frac{1}{2}}$. Mivel a geometriai faktorokra mindig fennáll az ($L_1+L_2+L_3=1$) összefüggés, valamint a (78) képlet alapján látható, hogy egyforma hosszúságú tengelyekhez egyforma geometriai együtthatók tartoznak, ezért forgási ellipszoidok esetén a rövidebb tengely(ekhez) tartozó geometriai faktorok meghatározása egyszerű. Látható,

hogy az ellipszoidok a hosszabb tengelyeik mentén a nagyobb hullámhosszakon rezonánsak. A geometriai együtthatók segítségével kifejezhetők az adott nanoellipszoid depolarizációs faktora is (L'),

$$L'_p = \frac{\varepsilon - \varepsilon_m}{\varepsilon - 1} \frac{L_p}{\varepsilon_0 \varepsilon_m} \quad (86)$$

melynek jelentését a

$$E_{1x} = E_{0x} - L'P_{1x} \quad E_{1y} = E_{0y} - L'P_{1y} \quad E_{1z} = E_{0z} - L'P_{1z} \quad (87)$$

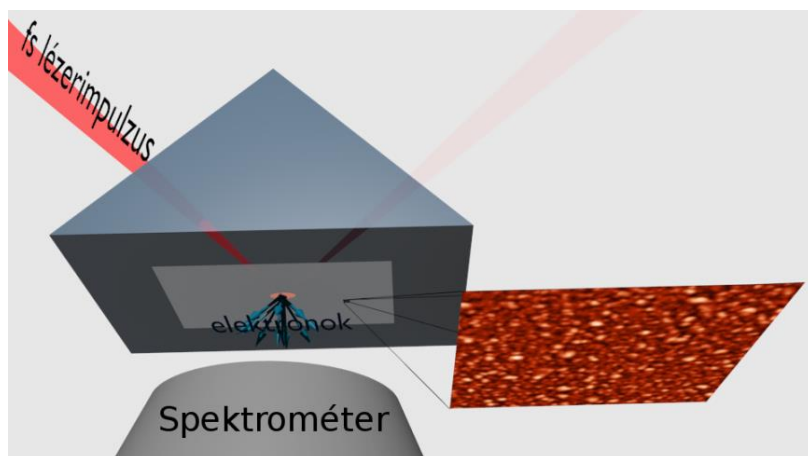
kifejezés adja, ahol E_I , és P_I a nanorészecskében indukált elektromos teret, valamint polarizációt adja, E_0 pedig a külső elektromos teret.

A fenti megfontolásokkal tetszőleges ellipszoidális nanorészecske esetén meghatározható a körülötte kialakuló potenciál és térerősség, melyből következtetések vonhatók le a fotoemisszió és az elektrongyorsítás tulajdonságaira vonatkozóan.

5. Ultragyors plazmonikus elektronemisszió kísérleti vizsgálata különböző érdességű mintákról

5.1 Kísérleti eredmények

A továbbiakban ismertetem a kísérleti eredményeimet, melyek a plazmonikusan keltett elektronnyalábok tulajdonságait hivatottak vizsgálni az alkalmazott fémrétegek felületi érdességének függvényében [127]. A méréseket a regeneratív lézerezősítő-rendszerrel, illetve a korábbiakban tárgyalt kísérleti elrendezéssel valósítottam meg. Egy mérés alkalmával a mintára összesen $3 \cdot 10^5$ lézerimpulzust bocsátottam, ami a lézerrendszer 1 kHz-es ismétlési frekvenciáját figyelembe véve 5 perces mérési időt jelent. A lézerimpulzusokat felületi plazmon hullámokká Kretschmann konfigurációban csatoltam be. A kísérletsorozatot 3 db elektronsugaras párologtatással előállított különböző felületi érdességgel rendelkező ezüstmintával hajtottam végre. A felületi érdesség mértékét különböző nedvesítő közegek, illetve a felületi réteg növesztése során alkalmazott hőmérséklet megválasztásával lehet befolyásolni [107,109]. Ezek alapján a legérdesebb réteg 4,7 nm négyzetes (rms) felületi érdességgel rendelkezik, ebben az esetben nem került sor nedvesítő közeg alkalmazására. A maradék két esetben 1 nm-es Ni és Ge nedvesítő közeg alkalmazásával sikerült létrehozni rendre 1,8 nm, illetve 0,7 nm négyzetes felületi durvasággal rendelkező rétegeket. Az ezüstréteg vastagsága kivétel nélkül 50 nm volt. A kísérleti eredmények, vagyis a három mintához tartozó intenzitásfüggő elektronspektrumok a 18. ábrán láthatók. Megfigyelhető, hogy a legnagyobb energiájú elektronok (azonos intenzitás mellett) a legnagyobb, 4,7 nm-es felületi érdességgel rendelkező mintáról eltérő, míg a másik két mintáról (Ag réteg 0,7 nm és 1,8 nm felületi érdességgel) közel hasonló spektrumokat kaptam.



16. ábra: A mérési összeállítás. Az ultrarövid lézerimpulzust a felületi Ag rétegre fókuszáltam, ahonnan elektronok lépnek ki, melyek aztán a repülési idő spektrométerbe jutnak. A prizma egyben vákuumablakként is szolgál. A kép jobb oldalán látható egy atomi erő mikroszkóppal, a felület $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$ nagyságú részéről készült kép.

Az ezüst felületekről atomi erő mikroszkóppal (AFM) készültek topográfiai képek (17. a-c). A minták jól kontrollált elkészítése és AFM mikroszkóppal történő karakterizálása a Varsói Egyetemen történt meg. Az atomi erő mikroszkópos mérések egy Ntegra NTMDT mikroszkóppal készültek el, tapping üzemmódban. Az alkalmazott tű görbülete 10 nm volt, valamint a tű a mérés során 140 kHz frekvenciával rezgett. Az AFM mikroszkóphoz tartozik egy Nova nevű szoftver, amely kiszámolta a felület topográfiai adataiból a felületi érdességet. A felületi érdesség kiszámításakor első lépésként fontos az „átlagfelület” meghatározása, melynek kiszámítása a

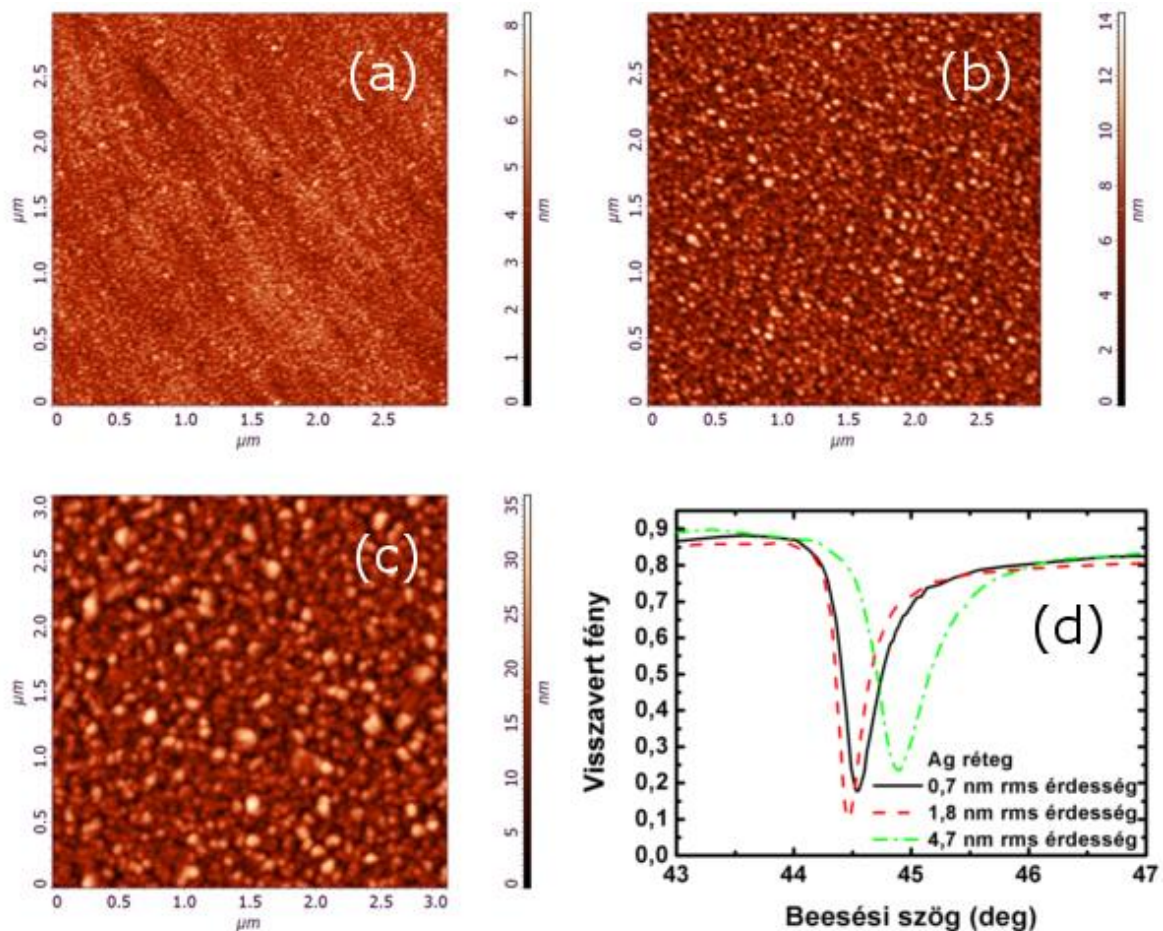
$$\mu = \frac{1}{N_x N_y} \sum_{j=1}^{N_y} \sum_{i=1}^{N_x} Z_{ij} \quad (88)$$

képlettel történik, ahol egy négyszög alakú felületen $N_x \cdot N_y$ db. mért ponttal rendelkezünk, illetve Z_{ij} jelenti a mért magasságértékeket. A felületi érdesség meghatározása ezt követően az

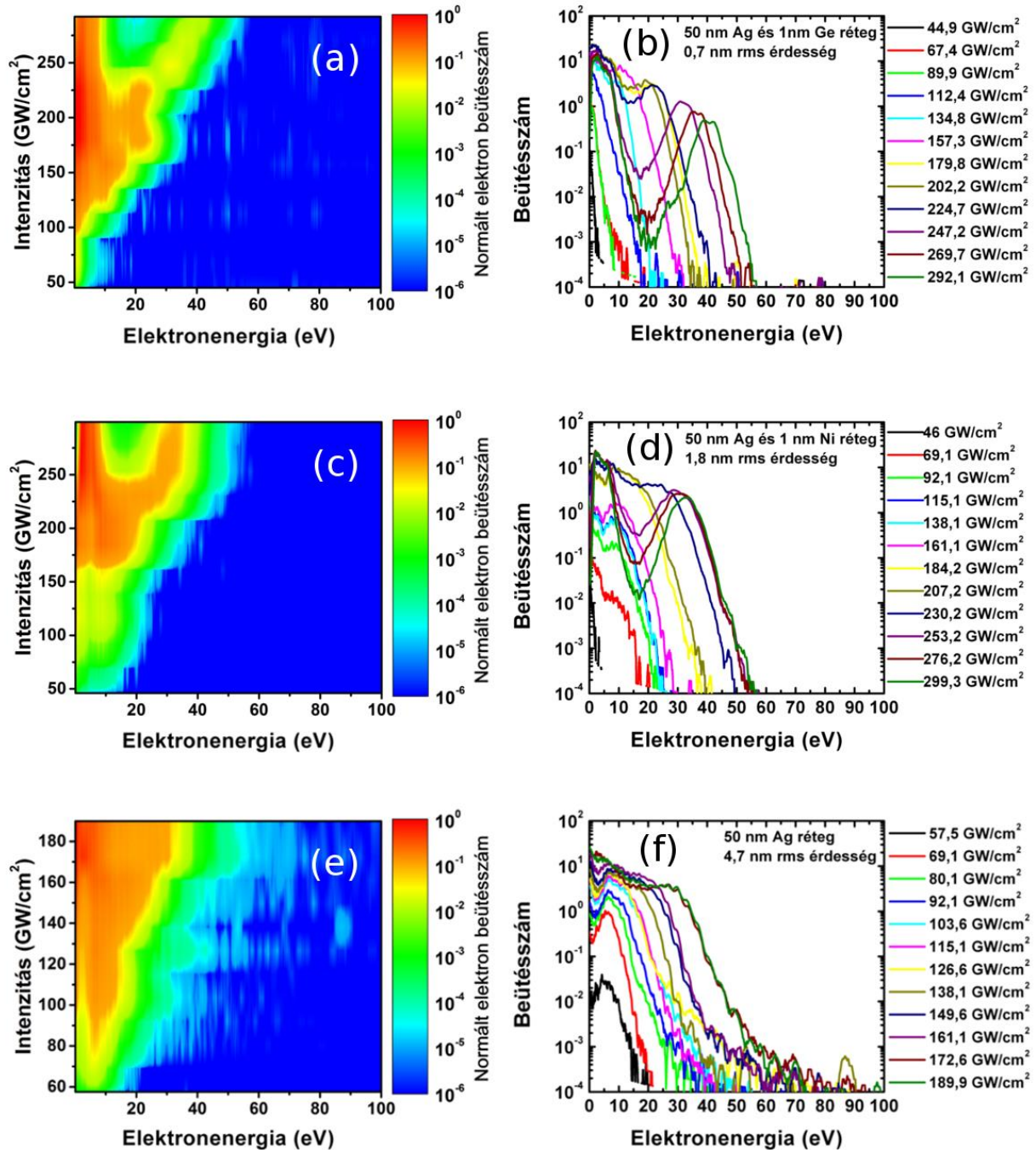
$$rms = \sqrt{\frac{1}{N_x N_y} \sum_{j=1}^{N_y} \sum_{i=1}^{N_x} (Z_{ij} - \mu)^2} \quad (89)$$

képlettel történik [107-109].

Ezen túlmenően a szögfüggő plazmonrezonanciát (17. d) is kimértem. A mérés alkalmával folytonos üzemmódban működő, hosszúrezonátoros Ti:zafír lézertől származó, fókuszálatlan nyalábot bocsátottam rá a prizmákra és mértem ki a visszavert fény teljesítményét a beesési szög függvényében. A kísérleti eredmények alapján a plazmon rezonanciagörbéje kis mértékben függ a felületi érdességtől, valamelyest módosítva a becsatolás rezonanciagörbe maximumának szögét, a rezonancia mélységét, valamint félértékszélességét.



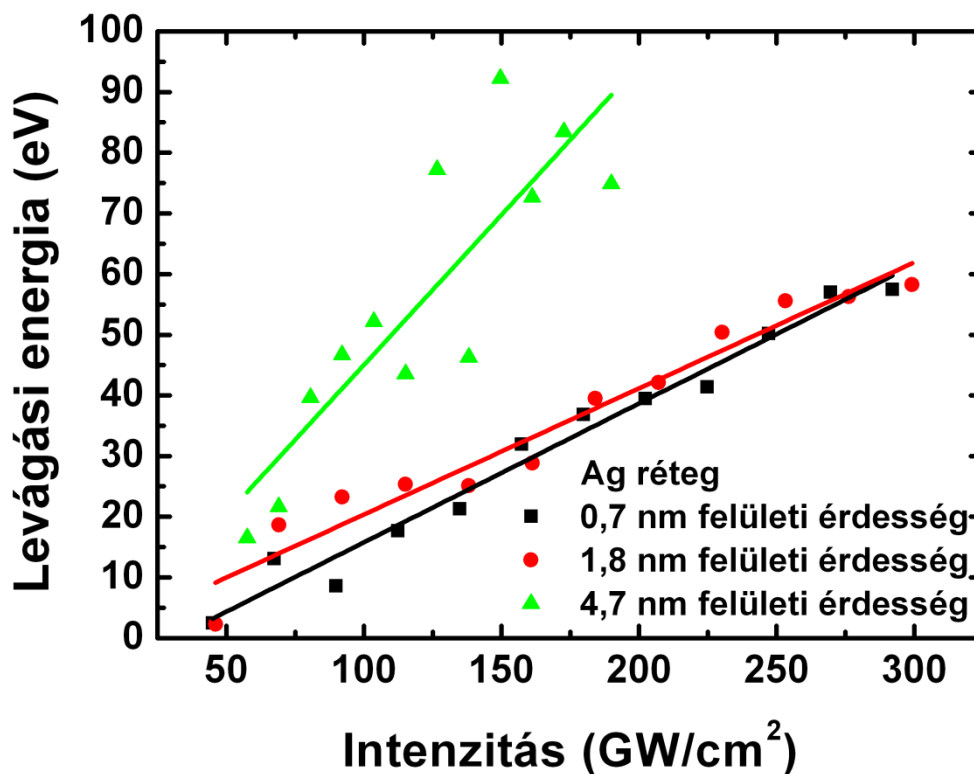
17. ábra: Az 50 nm vastag Ag felületek $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$ nagyságú részéről atomi erő mikroszkóppal készült felvételek. **(a)** Az 1 nm Ge nedvesítő réteggel készült minta (0,7 nm négyzetes felületi érdesség), **(b)** Az 1 nm Ni nedvesítő réteggel készült minta (1,8 nm négyzetes felületi érdesség), **(c)** Nedvesítő réteg nélkül készült minta (4,7 nm négyzetes felületi érdesség), **(d)** A három mintára vett plazmonbecsatolás szögfüggő rezonanciagörbéje. A kísérlet során a beérkező és a reflektált fény teljesítményét mértem meg a nyaláb ezüstfelületekre vett beesési szögének függvényében.



18. ábra: Elektronspektrumok a lézerintenzitás függvényében az 50 nm vastag Ag felületekről. A beütésszámokat normáltam, valamint színekkel ábrázoltam logaritmikus skálán. Az egyes spektrumok különböző intenzitásokra a jobb oldalon láthatók. **(a)** Elektronspektrumok a 0,7 nm felületi érdességgel rendelkező mintáról, valamint **(b)** az egyes spektrumok a különböző intenzitásokra. **(c)** Elektronspektrumok az 1,8 nm felületi érdességgel rendelkező mintáról, valamint **(d)** az egyes spektrumok a különböző intenzitásokra. **(e)** Elektronspektrumok a 4,7 nm felületi érdességgel rendelkező mintáról, valamint **(f)** az egyes spektrumok a különböző intenzitásokra.

5.2 Diszkusszió

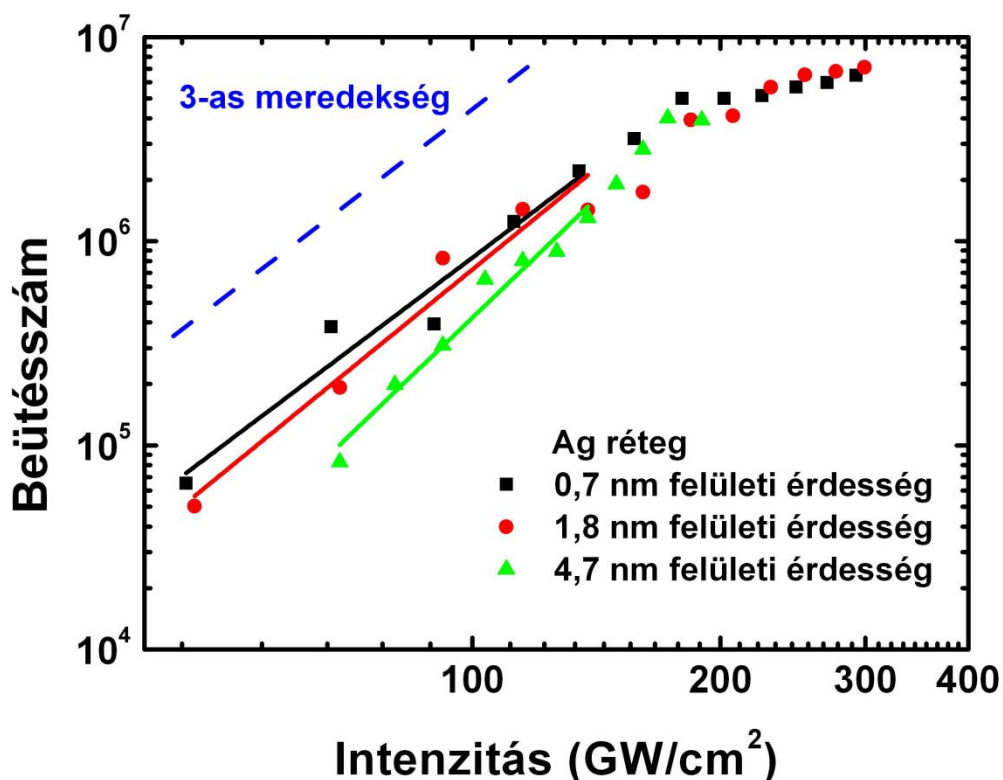
A mérések célja volt kimérni a különböző felületi érdességgel rendelkező mintákról az elektronspektrumok, illetve teljes beütésszámok intenzitásfüggését. Az intenzitásfüggő elektronspektrumokból, valamint a 19. ábrából kiderül, hogy a maximális kinetikus energiával rendelkező elektronok energiái, az ún. levágási, vagy cutoff energiák értéke több tízszeresen meghaladja a gerjesztő fotonenergiát, valamint lineárisan skálázódik a megvilágító lézer intenzitásával.



19. ábra: A levágási, vagy más néven cutoff energiák a lézerintenzitás függvényében a különböző felületi érdességgel rendelkező mintákra. A levágási energiákra az alkalmazott intenzitás függvényében egyenest illeszttem, melynek meredeksége a különböző minták esetén más értéket vett fel, rámutatva a felületi érdesség plazmonikus fotoemisszióban és gyorsításban betöltött szerepére.

Az elektronspektrumok levágási energiái közti eltérés oka az érdes felület mentén nm-es skálán modulált, lokális ponderomotoros potenciál, mely a fotoemittált elektronokra a kilépés helyétől függően más-más hatást gyakorol. Ez alapján feltételezhető, hogy az egyes

spektrumokat jellemző legnagyobb energiájú elektronok a felület viszonylag kevés ún. forró pontjából származtathatók. Jól látható, hogy a felületi érdesség mértéke és az elektronspektrumok maximális kinetikus energiája között nem triviális, nem monoton összefüggés áll fenn, ami viszont a probléma további, numerikus elemzését igényli.



20. ábra: Az elektronok teljes beütésszáma a lézerintenzitás függvényében. A kisebb intenzitású szakaszon jól illeszthető hatványfüggvény a mért adatokra, itt a többfotonos fotoemisszió dominál.

A teljes beütésszám intenzitásfüggése a 20. ábrán látható, melynek alacsonyabb intenzitásokon jól észrevehetően hatványfüggvény jellege van. Ez azt mutatja, hogy ebben a tartományban az elektronok többfotonos emisszióval lépnek ki a mintából. Az átmenet kb. 130 GW/cm²-nél következik be. Ez a letörés annak tudható be, hogy az intenzitás növelésével a fotoemisszióban elértem az átmeneti tartományt, ahol a Keldis-féle skálaparaméter 1-hez közeli értéket vesz fel. Ennél is magasabb intenzitásokon már az alagútemisszió a meghatározó fotoemissziós mechanizmus. Az alacsonyabb intenzitásokon hatványfüggvényt illesztettem a

beütésszámok intenzitásfüggésére. Ezek értéke a legkevésbé érdes mintára $3,04 \pm 0,41$, a közepesen érdes mintára $3,29 \pm 0,41$, míg a legérdeesebb mintára $3,87 \pm 0,32$ adódott. Ezen értékek három, vagy négy fotonos fotoemisszióra utaltak, ami jó összhangban áll a várakozásokkal, figyelembe véve az 1,55 eV-os fotonenergiát, valamint az ezüst irodalomból ismert kilépési munkáját, mely 4,26-4,74 eV közti érték [128,129].

6. Ultragyors plazmonikus elektronemisszió elméleti vizsgálata a felületi érdeesség függvényében

Ebben a fejezetben az érdes felületekről származó elektronemisszió tulajdonságait vizsgálom meg modellszámítások eredményeinek felhasználásával [127]. Az általam alkotott modellben a felületi érdeességet a minta érdeességének megfelelő méreteloszlású, megfelelően kivilágított ellipszoidális nanorészecskék formájában veszem figyelembe. Ezen felül feltételeztem, hogy a nanorészecskék alakja közelíthető forgási ellipszoiddal, ami mindössze két paraméterrel jellemezhető: az átmérővel, illetve a magassággal. Mivel a gyakorlatban a felületi szemcsék felülettel párhuzamos kiterjedése többszörösen meghaladta a magasságukat, ezért a felületi szemcséket lencseszerű forgási ellipszoidokkal közelítettem. A modell előnye, hogy a 4.3 alfejezetben ismertetett módon az elektromos tér a nanoellipszoidok környezetében analitikusan számolható [61,130].

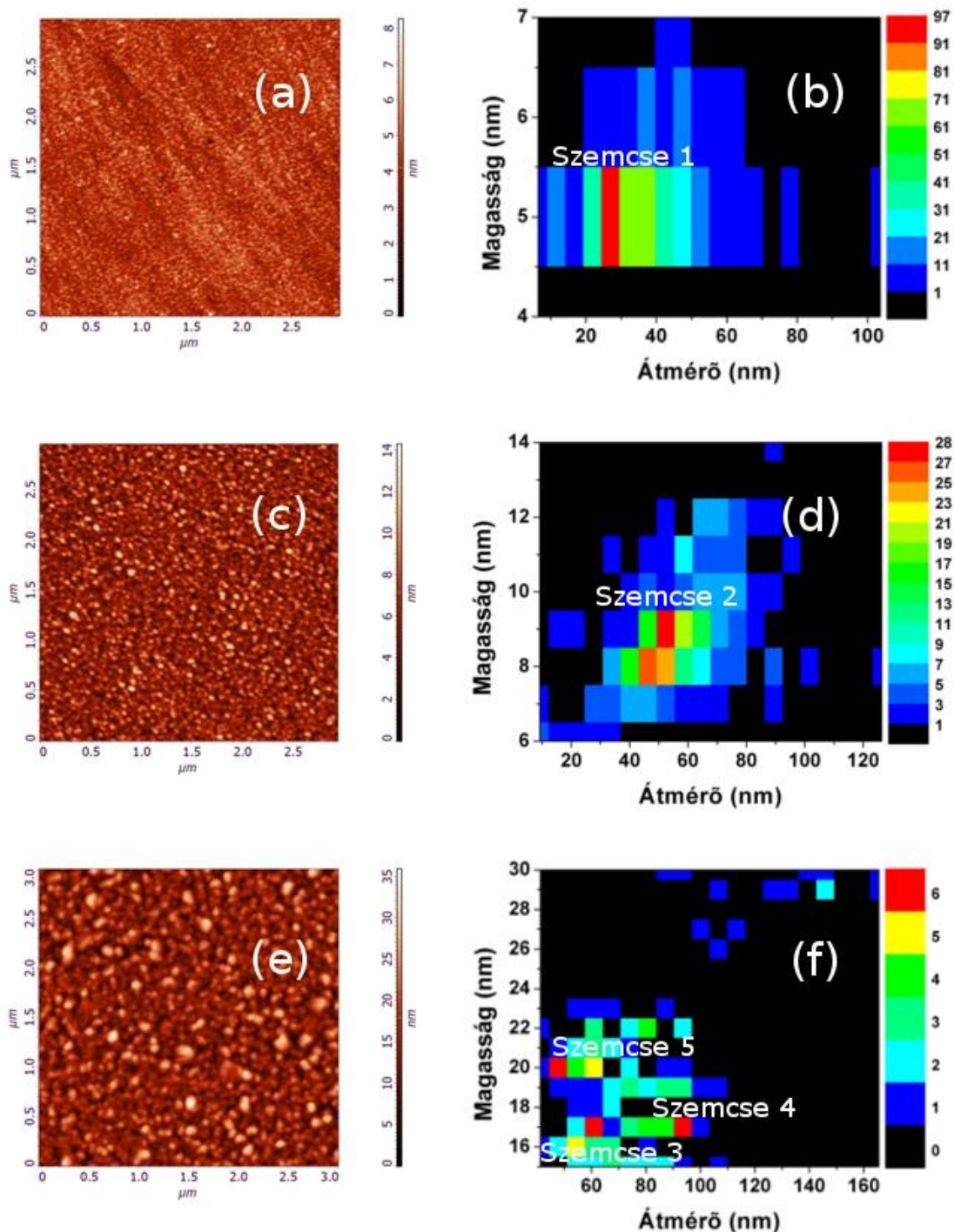
6.1 A modell elemei

A modell megvalósításának első lépéseként megbecsültem a felületen levő szemcsék tipikus méreteit atomi erő mikroszkópos felvételekből. A szemcseméreték leolvasásához a GIMP rajzolóprogramot használtam. A GIMP számos bépített funkciója, mint amilyen a mérőeszköz, vagy a szín szerinti kijelölési eszköz, lehetővé teszi a szemcseméreték viszonylag gyors és kényelmes egyenkénti leolvasását, ami alapján a dolgozatban bemutatott hisztogramokat elkészítettem. Ezek az eloszlások, illetve a hozzájuk tartozó atomi erő mikroszkópos képek is láthatók a 21. ábrán. Az itt bemutatott kétdimenziós eloszlások alapján a különböző minták szemcséit reprezentáló korong alakú forgási ellipszoidok tipikus méreteit tartalmazza az 1. táblázat. Jól megfigyelhető, hogy a két kevésbé érdes mintán levő felületi szemcsék tipikus méretei nem térnek el egymástól szignifikánsan, az ezen mintákhoz tartozó

szemcsék eloszlásai homogénnek tekinthetők. A legérdeesebb minta esetén azonban az eloszlás közel sem tekinthető homogénnek, az ezen a felületen levő szemcséket így három különböző méretű nanoellipszoiddal szükséges közelíteni. Ezen feltételezések alapján már lehetséges becslést adni a felületi plazmon polariton által létrehozott elektromágneses tér nagyságára a felületi szemcséken, valamint érthetővé válnak a mért spektrumok egyes tulajdonságai is.

Minta	Szemcse	négyzetes felületi érdesség (nm)	Nagy tengelyek hosszának fele (nm)	Fél kistengely hossza (nm)	Normált térerősség
50 nm Ag réteg 1 nm Ge nedvesítő közeggel	Szemcse 1	0,7	14	2,5	0,657
50 nm Ag réteg 1 nm Ni nedvesítő közeggel	Szemcse 2	1,8	28	4,5	0,647
50 nm Ag réteg nedvesítő közeg nélkül	Szemcse 3	4,7	30	8,5	0,773
	Szemcse 4	4,7	45	8,5	0,696
	Szemcse 5	4,7	25	10	1

1. táblázat: Az egyes minták jellemző adatai, illetve a minták felületi érdességeit jól reprezentáló forgási ellipszoidok fél nagy és kistengelyeinek hosszai, és a szemcsék tetején kialakult normált térerősség. A két kevésbé érdekes minta homogénebb, a szemcsék jól közelíthetők egy ellipszoiddal, míg a legérdeesebb minta szemcséinek eloszlása egyedi, így itt három forgási ellipszoidot vettem alapul.

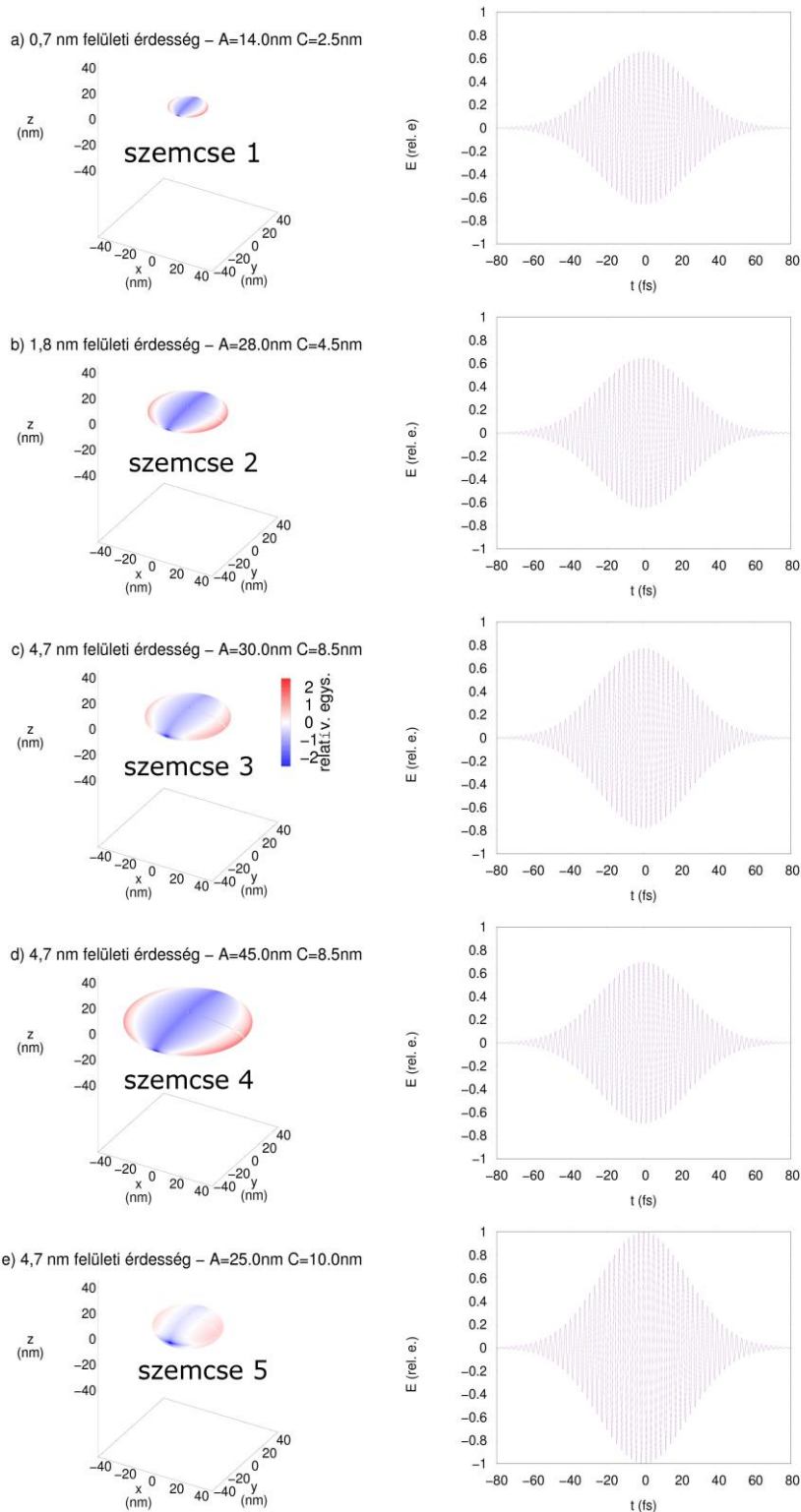


21. ábra: A különböző felületi szemcsékkel rendelkező Ag minták $3\ \mu\text{m} \times 3\ \mu\text{m}$ -es felületeiről készült atomi erő mikroszkópos kép a bal oldalon. Az ezen mintákhoz tartozó felületi érdességet jellemző kétdimenziós magasság-átmérő eloszlás a jobb oldalon. A Ge nedvesítő közeggel (a) készült mintáról alkotott kép, melynek négyzetes felületi érdessége $0,7\ \text{nm}$, valamint (b) a hozzá tartozó méreteloszlás. A Ni nedvesítő közeggel (c) készült mintáról alkotott kép, melynek négyzetes felületi érdessége $1,8\ \text{nm}$, valamint (d) a hozzá tartozó méreteloszlás. Nedvesítő közeg nélkül készült (e) mintáról alkotott kép, melynek négyzetes felületi érdessége $4,7\ \text{nm}$, valamint (f) a hozzá tartozó méreteloszlás.

6.2 A modellezési eredmények, összevetés a kísérlettel

A szemcséket reprezentáló nanoellipszoidokon kialakuló elektromos tér nagyságának meghatározása kvázisztatikus közelítéssel történt, a 4.3 alfejezetben leírtaknak megfelelően. Az ellipszoidok felületén kialakuló elektromos tér a 22. ábrán látható. Megjegyzendő, hogy csak a nanoellipszoidok tetején kialakuló elektromos tér a releváns számunkra, illetve csak innen tételezünk fel fotoemissziót, mivel a felületi érdesség a széleken eltűnik. A 22. ábrából látható, hogy a két kevésbé érdes mintát reprezentáló ellipszoidon kialakuló térerősség nagysága közel azonos, és ez kisebb a legérdeesebb mintát reprezentáló ellipszoidokon létrejövő tértől. A kialakuló nagyobb tér nagyobb ponderomotoros gyorsítást, ezáltal összességében nagyobb elektronenergiát jelent. Ez jól egyezik a kísérleti eredményekkel, melyek alapján a két kevésbé érdes mintáról jövő elektronok közel azonos energiával rendelkeznek, valamint az ezen mintákról érkező elektronok energiája jóval alatta marad a legérdeesebb mintáról érkező legnagyobb energiájú elektronokénak. A felületi plazmonos elektrongyorsításra utal továbbá az a tény, hogy a keletkező maximális elektronenergiák jóval meghaladják (ld. 18. ábra) a gerjesztő fény fotonenergiáját, ami 800 nm-en 1,55 eV-nak felel meg.

Mindezek alapján, az általam alkotott modellel meg tudtam magyarázni azt a kevésbé intuitív kísérleti eredményt, hogy a különböző felületi érdességű minták esetén miért állnak elő az észlelt maximális elektronenergiák. A modell és a kísérletek jó egyezése arra enged következtetni, hogy az érdes plazmonikus felületekről keltett fotoemisszió és elektrongyorsítás során kulcsszerepe van a felületi plazmon polaritonok és lokalizált felületi plazmonok csatolásának [104-106]. Ennek a jelenségnek például plazmonikus fotokatódok [43-45] fejlesztésénél lehet a későbbiekben nagy szerepe.

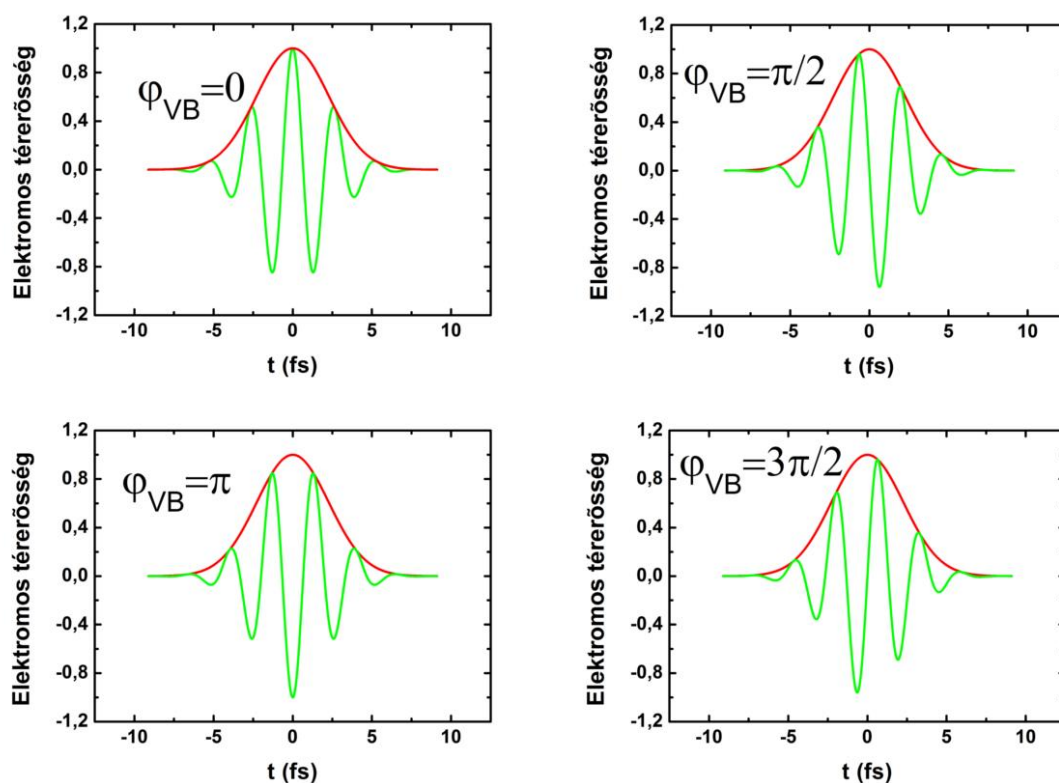


22. ábra: Az egyes minták felületi érdességeit legjobban reprezentáló lencse típusú forgási ellipszoidok, illetve a rajtuk kialakult elektromos tér a bal oldalon színskálával ábrázolva. 'A' jelöli a nagytengelyek hosszának felét, míg 'C' kistengely hosszának fele. Jobb oldalt látható a nanorészecske tetején kialakuló elektromos tér időbeli lefutása egy 40 fs félértékszélességgel rendelkező lézerimpulzus gerjesztése során. Az első két sorban látható a Ge, illetve Ni nedvesítő közegekkel készült Ag réteg szemcséinek modellje, míg az utolsó három sorban a nedvesítő közeg nélkül készült Ag film tipikus részecskéi láthatók.

7. Plazmonikus nanorészecskékről történő elektronemisszió vivő-burkoló fázisfüggése

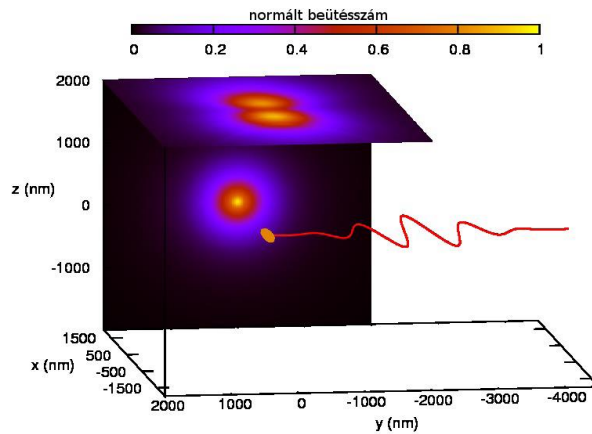
7.1 A modell segítségével levonható következtetések

Ebben a fejezetben ismertetem azokat a modellszámítások eredményeinek felhasználásával kapott következtetéseket, melyek a nanorészecskékről történő vivő-burkoló (CEP) fázisfüggő fotoemisszió tulajdonságaira vonatkoztak [130]. A téma aktualitását a vivő-burkoló fáziskülönbségtől függő fotoemisszióról szóló kísérleti eredmények adják, hiszen több csoport is tanulmányozta a vivő-burkoló fázis hatását a fotoemittált elektronok spektrumára plazmonkeltés nélküli esetekben (nanotű, fémfelület) [18,19,131].



23. ábra: 3,8 fs intenzitás félértékszélességgel és időben gaussi lefutással rendelkező impulzusok időbeli alakja különböző vivő-burkoló fázisok esetén.

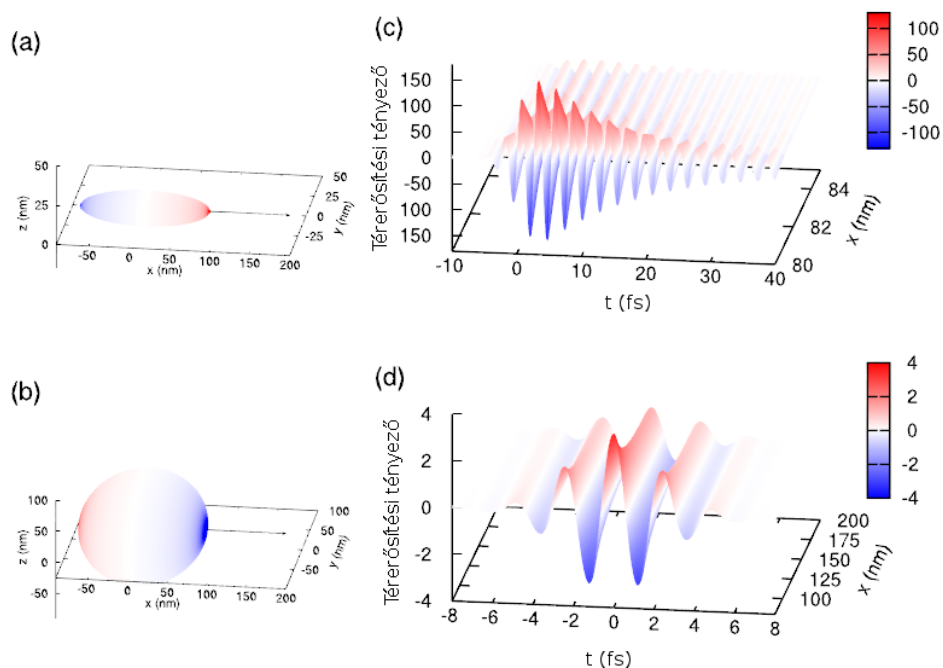
Ennek kapcsán az ellipszoidális nanorészecskékre vonatkozó programkód jelentős továbbfejlesztésével vontam le következtetéseket az elektronemisszió makroszkopikusan várt tulajdonságairól. Ennek során létrehoztam egy gyors adatkiértékelési rendszert, ami jelentősen lecsökkentette a kiértékelésre fordított időt. A vizsgált modellrendszer geometriája a 24. ábrán látható.



24. ábra: A vizsgált folyamatról készült sematikus ábra. Középen látható a nanoellipszoid, melyet a beérkező kevés optikai ciklusú lézerpulzus gerjeszt. Az ekkor fotoemittált elektronokat felül, illetve oldalt egy-egy „síkdetektor” érzékeli. Itt az elektronok beütésszámát színekódolva láthatjuk.

Az egyik vizsgált nanorészecske egy 800 nm hullámhosszal rendelkező gerjesztő fényre rezonáns szivar alakú szferoid, a másik egy ugyanezen hullámhosszon nemrezonáns gömb. Ennek kapcsán a 4.3 fejezetben leírtakat alapul véve vett modellszámítások eredményeinek felhasználásával történt a két nanorészecskére a bejövő elektromos gerjesztés válaszának meghatározása, valamint a nanorészecskéken kialakuló elektromos tér (ld. 25. ábra). A felületen kialakuló térerősség eloszlásából egy megfelelően megválasztott fotoemissziós modell (ld. 2.2 alfejezet) segítségével kiszámolható az ellipszoid adott részén létrejövő fotoemissziós valószínűség. Ennek során a részecske felületét megfelelő számú tartományra kell felbontani, olyan tartományokra, amelyeken belül a térerősség, és ezáltal a fotoemissziós valószínűség is állandónak vehető. A fotoemittált elektronok későbbi trajektóriái a klasszikus Lorentz egyenletből meghatározhatók, melyből következtetéseket vontam le az elektronnyalábok egyes

tulajdonságaira, az elektronspektrumokra, valamint a vivő-burkoló fázistól függő tulajdonságokra.



25. ábra: A nanorészecskéken kialakuló elektromos tér maximális nagysága színskálával ábrázolva a bal oldalon. **(a)** Egy szivar alakú 800 nm hullámhosszú fényre rezonáns szferoid, melynek a hosszabb féltengelye 80 nm, a két rövidebb 10 nm. **(b)** A 800 nm hullámhosszú fényre nemrezonáns gömb, melynek sugara 80 nm. A kialakuló térorősség rezonáns részecskén 1 GV/m, míg a nemrezonáns részecskén 10 GV/m elektromos térorősség amplitúdóval rendelkező gerjesztő lézerimpulzusok mellett kerültek meghatározásra. Az itt fellelhető nyilak mentén látható az elektromos tér idő, és térbeli lefutása **(c)**, **(d)**.

A vivő-burkoló fázisra érzékeny effektusok tanulmányozásánál a lézer elektromos terét

$$\mathbf{E}_L = \hat{\mathbf{x}}E_0 \cos(\omega_0 t + \varphi_{VB}) \exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2}\right) \quad (90)$$

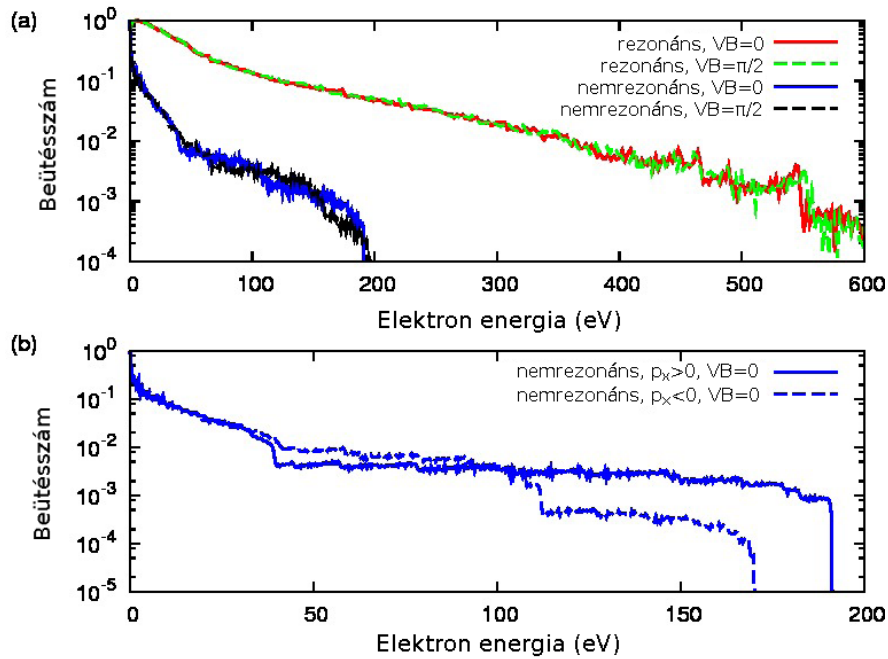
alakúnak vesszük, ahol ω_0 jelenti a lézerimpulzus központi, vagy más néven vivőfrekvenciáját, ami 800 nm-es központi hullámhossz mellett $2,36 \text{ fs}^{-1}$ -nek adódik. Továbbá a vizsgálatok során $\tau = 2,3 \text{ fs}$ -t vettem, amihez $3,8 \text{ fs}$ intenzitás félértékszélesség tartozik. φ_{VB} az impulzus vivő-burkoló fázisa, valamint E_0 a gerjesztő lézer elektromos terének amplitúdója, melynek értéke rezonáns részecske esetén 1, nemrezonáns részecskére 10 GV/m volt. Mivel a maximális erősítési tényező a nemrezonáns részecskére 4, míg a rezonáns részecskére 80, így a kialakuló

maximális térerősség még így is a rezonáns részecskén lesz nagyobb. Fontos megemlíteni, hogy a rezonáns részecskén a külső gerjesztés miatt létrejövő plazmonoszilláció időtartama jóval meghaladja a bejövő lézertér impulzushosszának értékét. Ennek oka, hogy egy ultragyors lézerimpulzus nem monokromatikus, hanem több spektrális komponensből tevődik össze. Egy adott frekvenciatérbeli sáv szélesség mellett létrehozható legrövidebb impulzus az ún. transzformáció limitált esetben jön létre, vagyis akkor, amikor a különböző frekvenciakomponensek fázisban vannak. Mivel a modellszámításoknál a transzformáció limitált eset áll fenn, így minél rövidebb egy impulzus időben, frekvenciatérbeli sáv szélessége annál nagyobb lesz.

Egy részecske extinkciós görbéje megmutatja, hogy a lézerimpulzus spektrális komponensei milyen mértékben vesznek részt a plazmonok gerjesztésében, ami a rezonáns részecske esetén egy viszonylag szűk frekvenciatartományt jelent, szűkebbet mint a lézer spektruma. A spektrális komponensek plazmonrezonancia miatti „szűrésének” következménye, hogy az ilyen nanorészecskén a létrejövő plazmonoszillációk hosszabb ideig fognak tartani, hosszan lecsengő tranziens jelenik meg (ld. 25. ábra), ami elmossa az ilyen részecskén létrejövő fotoemisszió vivő-burkoló fázistól függő tulajdonságait. Ellenben a nemrezonáns részecske extinkciója a vizsgált frekvenciatartományon jóval kevésbé függ a frekvenciától, a beérkező impulzus frekvenciatérben nem szűkül le, illetve időben nem szélesedik ki, így itt fellép a vivő-burkoló fázistól függő fotoemisszió jelensége.

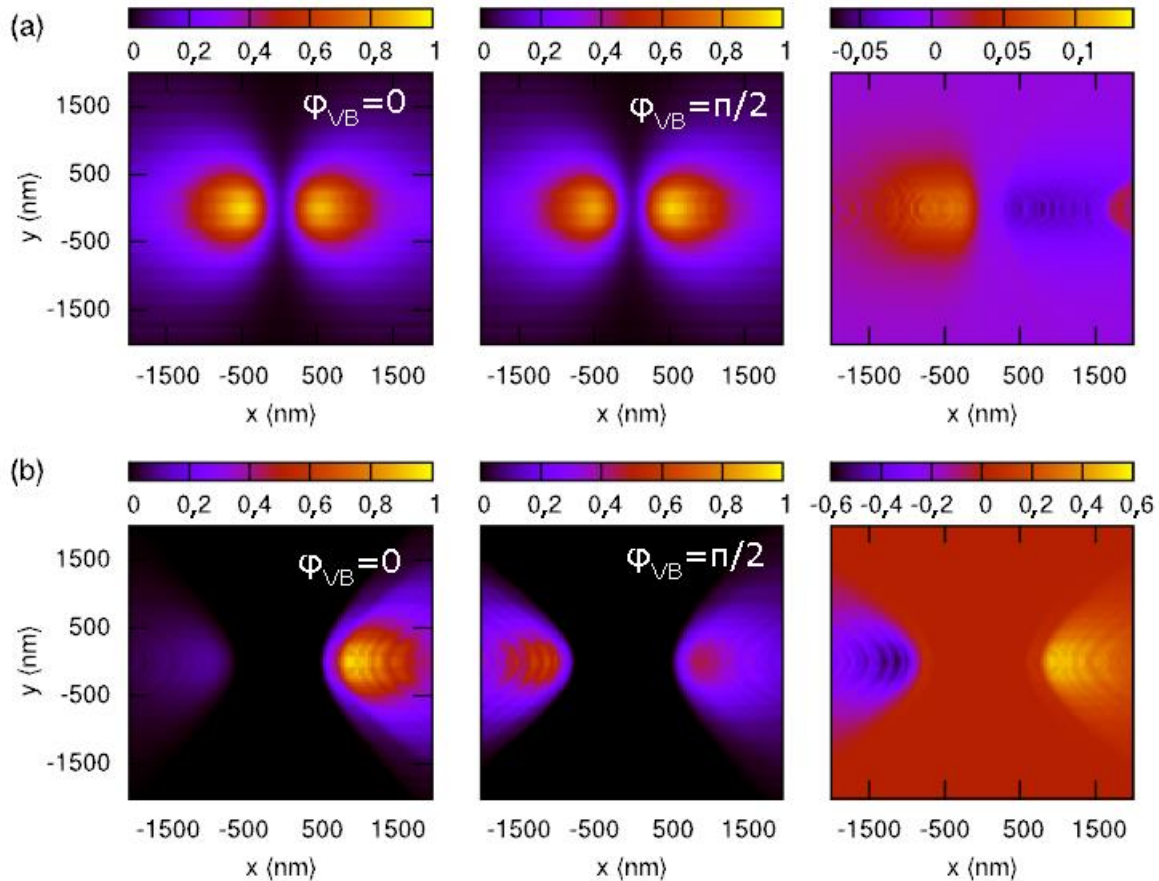
7.2 Az eredmények diszkussziója

Mint az várható, a rezonáns részecskén létrejövő elektromos tér a kialakuló lokalizált felületi plazmon miatt jóval meghaladja a nemrezonáns részecskén létrejövő tér nagyságát. Ebből közvetlenül is következik, hogy a rezonáns részecskéről érkező elektronok nagyobb energiával rendelkeznek, mint a nemrezonáns mintáról érkezők.



26. ábra: A 800 nm hullámhosszú fényre rezonáns, illetve nemrezonáns részecskékről két különböző vivő-burkoló fázisú impulzussal megvilágított és ezáltal fotoemittált, valamint a közeltérben gyorsított elektronok energiaspektruma látható az **(a)** ábrán. A nemrezonáns részecskékről pozitív, illetve negatív x irányba fotoemittált elektronok energiaspektruma **(b)**. A beérkező lézertimpulzus elektromos tere nemrezonáns részecske esetén 10 GV/m, rezonáns esetben 1 GV/m-nek felelt meg.

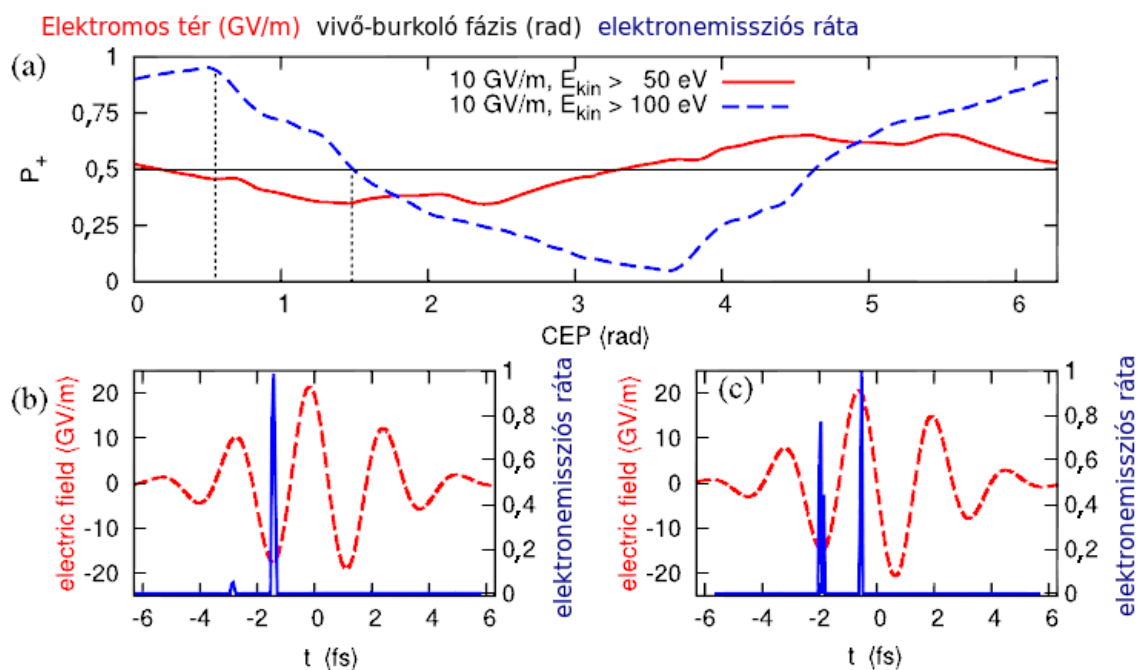
Ennek kapcsán jól látható a 26. (b) ábrán, a pozitív, illetve negatív irányú végső impulzussal rendelkező elektronok spektrumaiban levő eltérés. Jól megfigyelhető, hogy a spektrumok különösen a nagyenergiás részen térnek el egymástól. A 27. ábrán láthatók azok az eredmények, melyek során egy „síkdetektorra” érkeztek az elektronok két különböző vivő-burkoló fázisú gerjesztés esetén. Ezen fázisok nagysága $\varphi=0$, illetve $\varphi=\pi/2$ volt, a „síkdetektor” pedig a részecskétől 2000 nm-re z irányban volt elhelyezve, azaz a beérkező polarizációval párhuzamos volt a síkja. A fotoemittált elektronok térbeli eloszlásának vivő-burkoló fázistól való függése egyértelműen látszik, és csakúgy mint az előbb ez a függés sokkal hangsúlyosabb a nagyenergiás, jelen esetben a 100 eV-nál nagyobb energiával rendelkező elektronokra.



27. ábra: A nemrezonáns nanorészecskéről (a 80 nm átmérővel rendelkező gömbről) történő fotoemisszió vizsgálata egy z (vagyis a polarizációval párhuzamos) irányban 2000 nm távolságra levő „detektorral”, ahol a beütésszámok hely szerinti eloszlása színekkel kódolt. A felső sorban a teljes elektronáram beütésszámait láthatók $\varphi_{VB}=0$, illetve $\varphi_{VB}=\pi$ vivő-burkoló fázis mellett. A jobb oldalon a két különböző vivő-burkoló fázis mellett felvett eloszlások különbsége látható. Az alsó sorban a nagyenergiás elektronokról (vagyis azon elektronokról, melyek energiája meghaladja a 100 eV-ot) készült eloszlások láthatók. Jól megfigyelhető, hogy a vivő-burkoló fázistól függő effektus a nagyobb energiával rendelkező elektronokra hangsúlyosabb.

A 28. ábra mutatja a pozitív irányú impulzussal rendelkező, és egyben nagyenergiás elektronok keletkezésének valószínűségét a vivő-burkoló fázis függvényében. A függés egyértelmű, a már említett valószínűség értékei közti eltérés akár 10-szeres is lehet. Ugyanezen elektronok keletkezésének ideje is látható a 28. ábrán két különböző vivő-burkoló fázisra, valamint szintén látható a forgási ellipszoid végpontján ($x=a, y=z=0$) kialakuló elektromos tér időbeli lefutása. Jól megfigyelhető, hogy a nagy energiával rendelkező elektronok viszonylag szűk időintervallumokban keletkeznek, ami megmagyarázza a nemrezonáns részecskéről

történő fotoemisszió vivő-burkoló fázistól való érzékenységét. Jól látható, hogy a nagyenergiás elektronok különösen az első néhány oszcilláció során keletkeznek, aminek oka az, hogy az ekkor létrejövő elektronok nagyobb valószínűséggel szenvednek el visszaszóródást, ami az energiájukat jelentősen megnövelheti a nem visszaszórt elektronokéhoz képest. Továbbá feltehetjük, hogy a rezonáns részecskékre több ilyen intervallum létezik, ami ebben az esetben elmossa a rezonáns részecskékről érkező elektronok vivő-burkoló fáziskülönbségtől való függését.



28. ábra: (a) A pozitív p_x impulzussal rendelkező nagyenergiás elektronok vivő-burkoló fázisfüggése a nemrezonáns nanorészecske esetén. (b)-(c) A 100 eV-nál nagyobb energiával rendelkező elektronok keletkezésének ideje az $x=a, y=z=0$ pontban. Az ábrán látható a nanorészecskén kialakult elektromos tér normális komponensének időbeli lefutása. A gerjesztés $\varphi=0,17 \pi$ (b), valamint $\varphi=0,48 \pi$ (c) vivő-burkoló fázisok mellett látható.

A nemrezonáns részecskékről történő emisszió vivő-burkoló fázistól való érzékenysége az eddigiekben foglaltak alapján felhasználható a gerjesztő lézerimpulzus vivő-burkoló fázisának mérésére is, míg a plazmonikus rezonáns részecskék ezen célra való felhasználása nem lehetséges.

8. Plazmonikus nanorészecskéről kilépő elektronok és THz-es sugárzás kapcsolata

8.1 THz-es sugárzás keltése nanorészecskékről

A nanorészecskéken keltett plazmonok kísérőjelensége a THz-es elektromágneses impulzusok gerjesztése [132-134] amit az irodalomban két lehetséges folyamattal magyaráztak, azonban nem tisztázták a két folyamatnak a THz-es sugárzásban betöltött pontos szerepét. Eszerint a THz-es impulzusok a fémfelületek közelében fellépő optikai egyenirányítással [132], valamint a felületi plazmonok terében gyorsított elektronok sugárzásával [134,135] jöhetnek létre. Az optikai egyenirányítás [136] egy nemlineáris optikai effektus, melynek lényege egy ultrarövid lézerimpulzus frekvenciakomponensei közti különbségfrekvencia-keltés. A felület nanostrukturálása ugyanis olyan mértékű $\chi^{(2)}$ típusú effektív nemlinearitást okozhat, amely mellett a felületre eső lézertérnek mérhető, egyenirányított komponense jelenhet meg.

Felmerült továbbá, hogy valamiképpen az intenzív lézertérbe fotoemittált elektronok gyorsuló mozgása is felelős lehet a THz-es sugárzás megjelenéséért. Az elektronok ponderomotoros gyorsítása által létrehozható THz-es sugárzás becsléséhez [134,137] alapján feltehető, hogy a felületi THz-es forrás elektromos tere arányos a fotoemittált elektronok számával, illetve azok gyorsításával, vagyis

$$E_{THz} \sim \int_T \int_V N(I_{opt}, t, \mathbf{r}) a(I_{opt}, t, \mathbf{r}) d^3 \mathbf{r} dt \quad (91)$$

ahol I_{opt} jelenti a megvilágító lézerimpulzus intenzitását, V a plazmon terének effektív térfogatát, T az alkalmazott impulzusüzemű lézer periódusidejét, N a fotoemittált elektronok számát, valamint a az elektronok gyorsítását. Tudva, hogy a felület mentén $E_{SP} = \eta E_0$, vagyis a felületi plazmon tere kifejezhető a megvilágító lézertér nagyságából, az intenzitás pedig

felírható a $c\varepsilon_0 E_0^2$ alakban, valamint a (62) kifejezésből meghatározható a Keldis-paraméter átmeneti tartományához ($\gamma = 1$) tartozó karakterisztikus intenzitás:

$$I_{opt}^{átmenet} = \frac{mW_{ki}c\varepsilon_0\omega^2}{2e^2\eta^2} \quad (92)$$

A 2.2 fejezetben írtak alapján az ennél alacsonyabb intenzitás mellett a többfotonos emisszió dominál, a fotoemittált elektronok száma pedig az intenzitás n_I -edik hatványával ($N \sim I^{n_I}$) arányos, ahol n_I jelenti a fotoemisszió létrejöttéhez szükséges fotonok számát. Nagyobb intenzitásra az alagútemisszió a meghatározó fotoemissziós folyamat, melyben a fotoemittált elektronok számát az intenzitás függvényében a Fowler-Nordheim formula (ld. 61. képlet) szabja meg. A képletben jól láthatóan van egy térerősségtől kvadratikusan (vagyis az intenzitással lineárisan), illetve egy exponenciálisan függő tényező, melynek értéke alacsonyabb intenzitásokon nullához, míg magasabb intenzitásokon egyhez tart. Ezek alapján megállapítható, hogy az alagútemisszió esetén a keletkező fotoáram nagysága az intenzitásnak minimálisan az első hatványával arányos, vagyis n_I értéke minimum 1. Az emittált elektronok gyorsításának intenzitásfüggésének meghatározásához feltesszük, hogy a gerjesztő lézerpulzus alatt annak elektromos tere állandónak vehető, valamint a gyorsulás is az intenzitástól hatványfüggvény alakban függ ($a \sim I^{n_2}$) (ld. 2.3. alfejezet). Amennyiben feltesszük, hogy a potenciál a vizsgált térrészben mindenütt egyforma, valamint felírható az

$$U_p = U_0 \exp(-\alpha z) \quad (93)$$

alakban, ahol $U_0 = \frac{e^2 E_{SP}^2}{4m\omega^2}$ a ponderomotoros potenciál a felületi plazmon terében, valamint α a már jól ismert lecsengési együttható, úgy ez alapján az elektronra ható ponderomotoros erő megadható a

$$F_p = -\frac{dU_p}{dz} = \alpha U_0 \exp(-\alpha z) \quad (94)$$

alakban. Amennyiben a felületi plazmon tere viszonylag kicsi, illetve a gyorsítás az ultrarövid impulzusú gerjesztés miatt rövid ideig tart, úgy az elektronok gyorsulása állandónak tekinthető, mely közelítés az

$$\frac{a_0}{2} \tau^2 \ll \frac{2}{\alpha} \quad (95)$$

feltétel esetén teljesül, vagyis akkor, amikor az elektron a gyorsítása során nem távolodik el jelentősen a felülettől, a gyorsulás alatt megtett út jóval kisebb a lecsengési együtthatónál. Ez a körülmény különösen kis intenzitások és impulzushosszak mellett jöhet létre. A felület közvetlen közelében a ponderomotoros gyorsítás

$$a_p = \frac{\alpha e^2 E_{SP}^2}{4m^2 \omega^2} \quad (96)$$

alakú lesz, valamint a (95) feltételből kiszámolható az a küszöbintenzitás, mely alatt az elektronok gyorsítása egyenletesnek tekinthető, mely megadható az

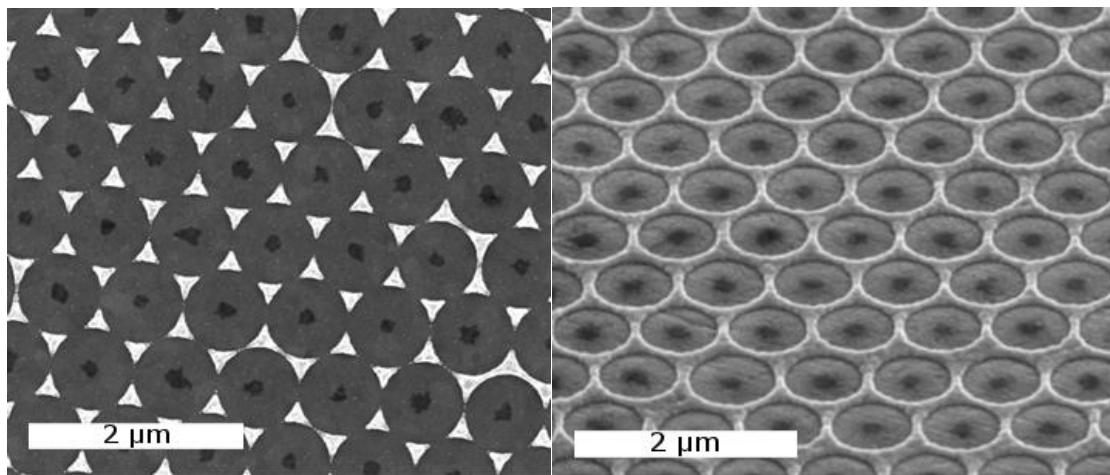
$$I_{opt}^{küszo} = \frac{4c\epsilon_0 m^2 \omega^2}{\alpha^2 e^2 \eta^2 \tau^2} = I_{opt}^{átmenet} \frac{16m}{\alpha^2 \tau^2 W_{ki}} \quad (97)$$

alakban. Az ennél nagyobb megvilágító intenzitások használatánál nem egyenletes elektrongyorsulások fognak létrejönni. Amikor az elektron még nem távolodott el a felülettől jelentősen, az elektronok gyorsítása lineárisan skálázódik a bejövő lézer intenzitásával, az n_2 értéke 1-nek vehető. Amennyiben az elektron a felülettől eltávolodik, úgy a gyorsítása a felülettől távolodva csökken, melyet az n_2 tényező csökkenésével vehetjük figyelembe. Ennek megfelelően a gyorsulást az intenzitás függvényében leíró összefüggésben n_2 értéke 0 és 1 között van, és az intenzitással csökken. Mivel az emittált THz-es intenzitás arányos az elektronok gyorsítása miatt létrejövő elektromos tér négyzetével, úgy meghatározható a THz-es jel alkalmazott lézerintenzitástól való függésének maximuma is. Alacsonyabb intenzitáson, tehát egyenletes elektrongyorsítás mellett és harmadrendű fotoemissziót feltételezve a

fentieknek megfelelően $1 < (n_1 + n_2) < 4$, ezért az várható, hogy a THz-es impulzusok intenzitása minimálisan a megvilágító fény intenzitásának a második, maximálisan a nyolcadik hatványával lehet arányos. Ennek a gondolatmenetnek az igazolására a folyamatot kísérletileg is vizsgálni kell, az ebben a fejezetben bemutatandó munkám fő célkitűzése ez volt.

8.2 Kísérleti eredmények a fotoemissziós és THz-es jelek összehasonlítására

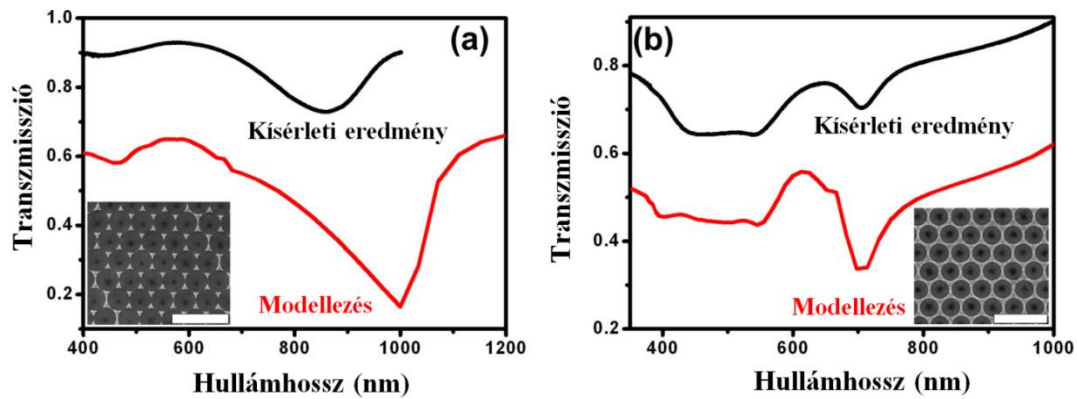
Annak érdekében, hogy az elektrongyorsítás és THz-es sugárzás közti összefüggés jobban érthetővé váljék, szükség van mind a THz-es jel, mind a fotoemittált elektronok alkalmazott lézerintenzitástól való függésének meghatározására, valamint ezek összehasonlítására. Ennek érdekében repülési idő spektrométerrel elektronspektroszkópiai méréseket végeztem a rendelkezésemre bocsátott két nanostrukturált ezüstmintáról, melyeket a velünk együttműködő Exeteri Egyetemen levő kutatócsoport készített el a 4.2.2 alfejezetben ismertetett nanogömb litográfiai eljárással.



29. ábra: A nanogömb litográfiával készült minták pásztázó elektronmikroszkópos képe. Bal oldalt láthatók a nanorészecskék, míg jobb oldalt a méhsejt-szerű minta.

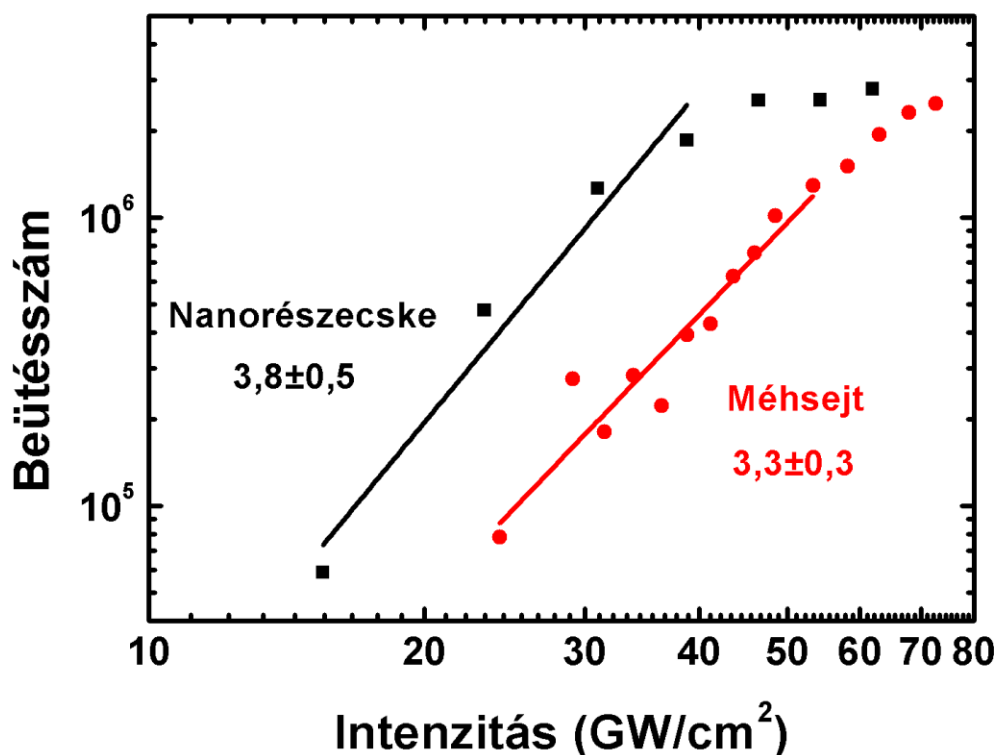
Ennek keretében kétféle mintáról végeztem méréseket, a 60 nm vastagsággal rendelkező nanorészecskéről, valamint az 50 nm vastagságú hexagonális méhsejt-szerű mintáról is (29. ábra), melynek során különböző intenzitású fénnel világítottam meg a rendelkezésemre

bocsátott mintákat. A nanostruktúrákról készült elektronmikroszkópos képek a 29. ábrán, míg a mintákat jellemző extinkciós és egyben a lokalizált felületi plazmonok becsatolásának hatásfokát jellemző görbék a 30. ábrán láthatók.



30. ábra: A nanogömb litográfiával készült minták extinkciós görbéi A fekete görbék a kísérleti eredményeket, míg a piros görbék a numerikus modellezés alapján számolt extinkciós görbéket mutatják. **(a)** A nanorészecskék extinkciós görbéje. **(b)** A méhsejt alakú minta extinkciós görbéje. (forrás: Dimitry Konstantinovich Polyushkintól)

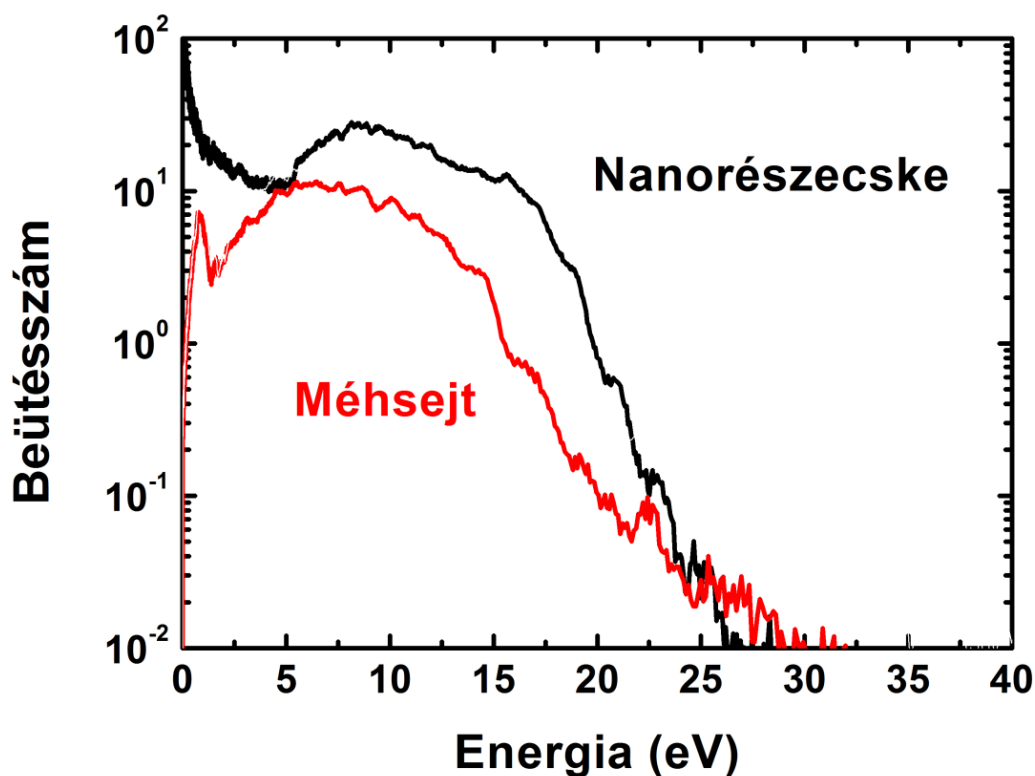
A kísérleteket a hosszú rezonátoros oszcillátorral, az erősítő lézerrendszerrel (ld. 4.1.1 alfejezet), valamint a repülési idő spektrométerrel (ld. 4.1.2 alfejezet) valósítottam meg. Egy mérés során a mintára 300.000 lézerimpulzust bocsátottam, ami a hosszú rezonátoros oszcillátor (impulzus kivágóval) 4,5 kHz-re csökkentett ismétlési frekvenciáját alapul véve bő 1 perces, míg az erősítő lézerrendszerrel 5 perc mérési időt jelent.



31. ábra: A fotoemittált elektronok beütésszámának intenzitásfüggése izolált nanorészecskék (fekete mérési pontok és illesztett egyenes), illetve a méhsejt-szerű minta (piros mérési pontok és illesztett egyenes) esetén.

Az elektronok beütésszáma az intenzitás függvényében a méhsejt, illetve a háromszögű nanorészecske alakú mintákról a 31. ábrán láthatók. Jól megfigyelhető, hogy alacsonyabb intenzitások mellett mindkét minta esetén a teljes fotoáram intenzitástól való függésének hatványfüggvény jellege van, ami többfotonos emisszióra utal. Erre az alacsonyabb intenzitású tartományon hatványfüggvényt illesztettem, melynek meredekségére a nanorészecskék esetén $3,8 \pm 0,5$, míg a méhsejtszerű mintára $3,3 \pm 0,3$ adódott, ami négy, illetve három fotonos fotoemisszióra utal. Ez jó összhangban áll a várakozásokkal, tekintettel a lézer központi frekvenciájához tartozó fotonenergia 1,55 eV-os nagyságára, valamint az ezüst kilépési munkájának irodalomból ismert értékére [128,129], ami 4,26-4,74 eV. Magasabb intenzitásokon megfigyelhető a fotoelektronok intenzitásfüggésében történő letörés, ami az átmeneti tartomány elérésére utal, ahol a Keldis-féle skálaparaméter értéke megközelíti az 1-et. Az átmeneti tartomány a nanorészecskék esetén kb. 35 GW/cm², míg a méhsejt-szerű minta

esetén 55 GW/cm^2 intenzitás mellett következik be. Ez a méhsejtszerű minta esetén megvalósuló kisebb térnövekményre is utal. Ennél is magasabb intenzitások esetén az elektronok alagútemisszió révén lépnek ki a mintáról (ld. 2.2 alfejezet). A fotoemittált elektronok a továbbiakban a felületi plazmon terében gyorsulnak. Ezen gyorsítási folyamatot támasztja alá a mért spektrumokban előforduló nagy elektronenergiák (ld. 32. ábra), a gerjesztő fény fotonenergiájához képest, ami $1,55 \text{ eV}$ -nak felelt meg.

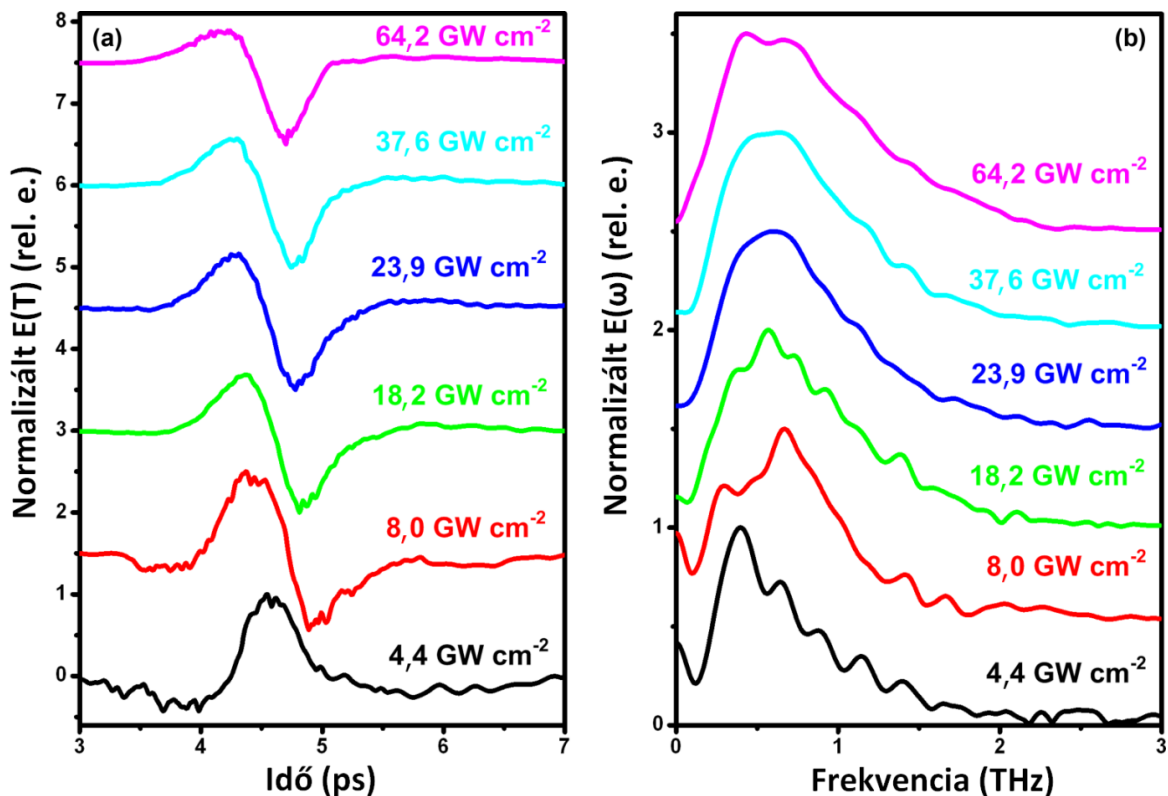


32. ábra: A nanorészecskéről (fekete görbe), illetve a méhsejt-szerű) mintáról nyert spektrum (piros görbe) kb. 60 GW/cm^2 -es alkalmazott lézerintenzitás mellett.

8.3 A mérések diszkussziója

A THz-es jel karakterizálását, illetve a beérkező lézerintenzitástól való függésének megállapítására szolgáló kísérleteket az Exeteri Egyetem együttműködő kutatócsoportja végezte el. A THz-es jel meghatározását szolgáló kísérleteket 800 nm -es központi hullámhosszú lézerimpulzusok mellett valósították meg $0,3\text{-}200 \text{ GW/cm}^2$ -es intenzitások

mellett. A mérés lényege a THz-es impulzusok által keltett kettőtörés mérése [134,135]. A kísérlet során a megvilágító ultragyors lézerimpulzusokat egy nyalábosztóval szétválasztják, melynek egyik ága a nanostrukturált mintára érkezik, a másik ága pedig egy ZnTe kristályra. A nanostrukturált mintákon keletkező THz-es jelet ráfokuszálják a ZnTe kristályra, amiben a THz-es jel hatására kialakul a kettőtörés. A kettőtörés miatt a kristályra érkező lézerimpulzus polarizációja megváltozik, melyből lehet következtetni a keletkezett THz-es jel nagyságára.

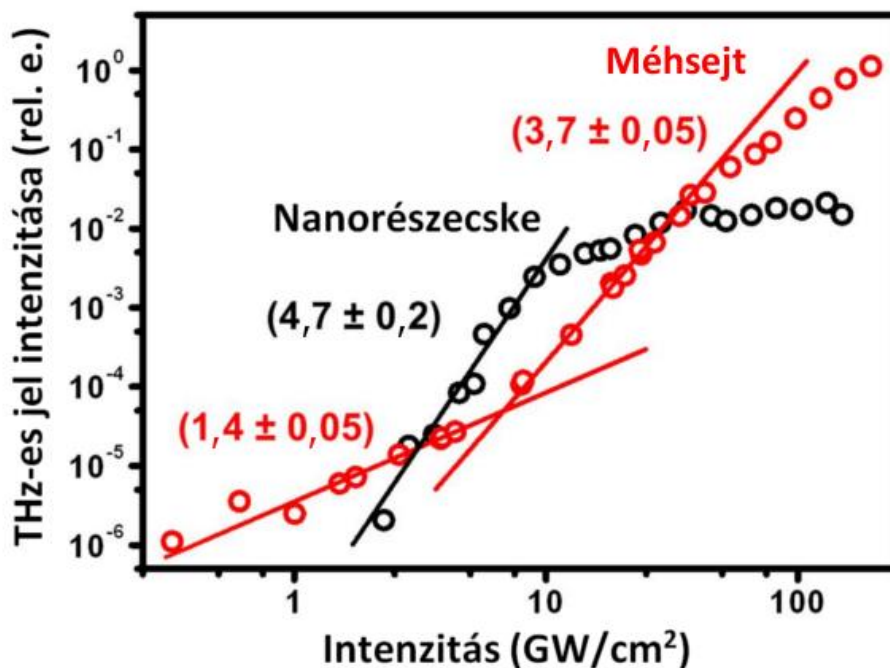


33. ábra: A méhsejtszerű nanorészecskékről nyert THz-es intenzitás idő, és frekvenciatérbeli alakja különböző alkalmazott intenzitások mellett. (forrás: Dmitry Konstantinovich Polyushkintól)

A kristályra érkező THz-es jel és lézernyaláb egymáshoz képest történő késleltetésével rekonstruálható a THz-es jel időbeli lefutása, amiből Fourier transzformációval meghatározható a spektrális jelalak, melynek négyzetre emelésével, és frekvencia szerinti integrálásával meghatározható a THz-es jel nagysága. Ilyen idő, illetve frekvenciatartománybeli jelalakok láthatók a 33. ábrán.

A THz-es jel nagyságának alkalmazott intenzitástól való függése a nanorészecskékről, illetve a méhsejtszerű mintáról a 34. ábrán látható. Jól megfigyelhető, hogy alacsonyabb intenzitásokon a nanorészecskék esetén a THz-es jel nagysága az alkalmazott lézerintenzitástól hatványfüggvény alakban függ, ahol a hatványkitevő $4,7 \pm 0,2$. Az átmeneti tartomány kb. 10 GW/cm^2 -es intenzitás mellett következik be, ahol látható egy letörés a keletkező THz-es jel nagyságának alkalmazott lézerintenzitástól való függésében. Ezen tulajdonságok a felületi plazmonok által keltett, és gyorsított elektronoknak tudható be. Ugyanis amíg alacsonyabb intenzitásokon a fotoemissziós folyamatban a többfotonos fotoemisszióval emittálódnak az elektronok, addig magasabb intenzitásokon az alagútemisszió a meghatározó emissziós csatorna. A két eltérő folyamatban a 2.2 alfejezetben foglaltaknak megfelelően eltérő a fotoáram intenzitásfüggése, ami a 8.1 alfejezetben leírtaknak megfelelően vezet a THz-es sugárzás intenzitásfüggésének sajátosságaihoz.

A méhsejtszerű mintáról nyert THz-es sugárzás intenzitásfüggésénél alapvetően három tartomány különböztethető meg. Alacsony intenzitásokon kb. 10 GW/cm^2 -ig a THz-es jel nagysága az alkalmazott lézerintenzitás $1,4 \pm 0,05$ -ik hatványával arányos, amiről feltehető, hogy nem a plazmonikusan keltett és gyorsított elektronoknak köszönhető, hanem az optikai egyenirányítás jelenségének. Ezt követően egészen kb. 50 GW/cm^2 -ig az intenzitásfüggés kitevője $3,7 \pm 0,05$ -re változik, amiről feltehetjük, hogy a többfotonos fotoemisszió okozza. Magasabb intenzitásokon, konkrétan 50 GW/cm^2 -nél megfigyelhető egy letörés, ami az átmeneti tartomány, illetve az alagútemisszió megjelenésének tudható be.



34. ábra: A THz-es jel intenzitása az alkalmazott 800 nm-es lézerintenzitás függvényében. (forrás: Dmitry Konstantinovich Polyushkintól)

Könnyen észrevehetőek a hasonlóságok a THz-es jel és elektronspektrumok intenzitásfüggésében. A méhsejt alakú nanorészecskekénél az elektronok intenzitásfüggése alapján az átmenethez tartozó intenzitás kb. $55 \text{ GW}/\text{cm}^2$ -nek felelt meg, míg a THz-es jel mérésekor ez az intenzitás kb. $60 \text{ GW}/\text{cm}^2$ -nek adódott, vagyis az egybeesés egyértelmű. A nanorészecskekénél az átmeneti tartományhoz tartozó intenzitás nagysága az elektronspektroszkópiai mérések alapján kb. $35 \text{ GW}/\text{cm}^2$ -nél található meg, az ugyanezen mintáról történő THz-es jel intenzitásánál azonban az átmenethez tartozó érték $10 \text{ GW}/\text{cm}^2$ -nek adódott a mérések alapján. Látható tehát, hogy a plazmonikusan keltett és gyorsított elektronok rendkívül fontos szerepet játszanak a fém nanoobjektumokról keltett THz-es sugárzás keltésében. A kísérletek alapján arra a következtetésre juthatunk, hogy míg alacsonyabb intenzitásokon, tipikusan $15 \text{ GW}/\text{cm}^2$ -es intenzitásküszöb alatt a keletkező THz-es sugárzást az optikai egyenirányítás hozza létre, addig magasabb intenzitásokon a THz-es sugárzást a plazmontérben emittálódó és gyorsuló elektronok okozzák, a kísérleteimmel tehát a THz-es sugárzás keltésének különböző mechanizmusait tártam fel.

9. Összefoglalás

A kísérleti és numerikus vizsgálataim tárgya az ultrarövid lézerimpulzus, illetve az anyag kölcsönhatásának egy speciális aspektusa volt, mégpedig a felületi plazmonok elektromágneses tere által indukált fotoemissziós, illetve elektrongyorsítási jelenségek. Ennek keretében először a különböző felületi érdességgel rendelkező ezüst vékonyrétegeken létrejövő, plazmonikusan erősített fotoemisszióra vonatkozó kísérleti eredményeimet mutattam be, kitérve a modellszámítások segítségével nyert elméleti aspektusokra is, melyek legfontosabb eleme a felületi plazmon polaritonok és lokalizált felületi plazmonoscillációk csatolása. Ezt követően ismertettem a fém nanorészecskékről létrejövő, vivő-burkoló fázisfüggő fotoemisszió tulajdonságait, szintén modellszámítások eredményeit bemutatva. A disszertáció végén a plazmonikusan keltett fotoemisszió és THz-es sugárzás keltésének összefüggéseiről írtam, melyet kísérletileg vizsgáltam és ezek alapján megállapításokat tudtam tenni az észlelt jelenségek mögött húzódó mechanizmusokra is. Ezek alapján a munkám során elért új tudományos eredmények a következők:

1. Elektron-spektroszkópiai méréseket végeztem különböző felületi érdességgel rendelkező mintákról emittált fotoelektronokon, melyekkel a plazmonikusan keltett és gyorsított elektronnyaláb felületi érdességtől való függését vizsgáltam. A kísérleteim során nagy energiájú, a fotonenergiát több tízszeresen meghaladó kinetikus energiával rendelkező elektronokat detektáltam. Az elektron-spektrumok nagyenergiás végének kitolódását az érdes felület mentén nm-es skálán modulált, lokális ponderomotoros potenciál hozza létre, mely a fotoemittált elektronokra a kilépés helyétől függően más-más hatást gyakorol. A spektrumokra jellemző nagy levágási energiát tehát a felület viszonylag kevés ún. forró pontjából származó elektron okozza. Továbbá kísérleteimmel azt is kimutattam, hogy a felületi érdesség mértéke

és az elektronspektrumok maximális kinetikus energiája között nem triviális, nem monoton összefüggés áll fenn, ami a probléma további, numerikus elemzését igényli. [F1]

2. Modellszámítások segítségével megmutattam, hogy az érdes felületekről történő, felületi plazmonos elektrongyorsítás folyamatát a felületi plazmon polaritonok és a lokalizált felületi plazmonok csatolása határozza meg. Az általam alkotott modellben a felületi érdeesség hatása jól közelíthető a felületre helyezett, megfelelő méreteloszlású nanoellipsoidokkal. A számítások segítségével igazolást nyert, hogy az ilyen felületi szemcsék plazmonrezonanciája határozza meg a mért elektronspektrumoknál észlelhető maximális elektronenergiát. [F1]

3. Modellszámítások segítségével igazoltam, hogy izolált plazmonikus nanorészecskékről történő fotoemisszió és elektrongyorsítás bal-jobb aszimmetriája felhasználható kevés ciklusú lézerimpulzusok vivő-burkoló fázisának meghatározására, amennyiben a lézerimpulzus központi frekvenciájától kellően távoli rezonanciával rendelkező nanorészecskéket tekintünk. Ellenben rezonáns nanorészecskék esetén a plazmonrezonancia sávszélességének korlátozott volta a vivő-burkoló fázishatást elmossa. [F2]

4. Kísérleteimmel bebizonyítottam, hogy a nanostrukturált mintákon ultrarövid lézerimpulzusok segítségével kelthető terahertzes sugárzást a fotoemittált, plazmontérben gyorsuló elektronok határozzák meg egy bizonyos értéket meghaladó lézer-csúcsintenzitás esetén. Az alkalmazott intenzitás szempontjából kritikus értéknek kb. 15 GW/cm^2 bizonyult, amely felett a fotoáram skálázása jó egyezést mutat a THz-es sugárzásával, míg ezen érték alatt jelentős eltérések tapasztalhatók. Így rámutattam a nanostrukturák segítségével létrehozott látható-THz frekvenciakonverzió különböző keltési mechanizmusaira. [F3]

Summary

The subject of my experimental and numerical research was a special topic within the interactions of ultrashort laser pulses and matter, namely electron photoemission and photoacceleration induced by surface plasmons. First, I introduced the experimental results of plasmonically enhanced photoemission from surfaces with different roughness. I also discussed the theoretical aspects and results of the aforementioned system obtained from numerical models. The most important result of the model was the confirmation of the coupling of surface plasmon polaritons and localized surface plasmons, the signatures of which I observed experimentally. Subsequently, I described the carrier-envelope phase dependent photoemission phenomenon from plasmonic nanoparticles also obtained with the help of a numerical model. Finally, I experimentally tested the relationship between plasmonically enhanced photoemission and the THz generation. Based on the experimental investigation, I could reveal the mechanisms of the observed phenomena. Accordingly, new scientific achievements are the following ones:

1. In my experiments, I detected electrons with high kinetic energy that is several tens of times higher than the energy of the exciting photons. The extension of the high-energy end of the spectra is attributed to the local ponderomotive potential modulated on nm scale along the rough surface. Therefore, the ponderomotive potential has a different effect on electrons photoemitted from different locations of the surface. The relatively high cutoff value typical for the spectra can be attributed to electrons photoemitted from relatively few hot-spots of the surface. Furthermore, I also demonstrated experimentally that the relationship between the extent of surface roughness and the most energetic electrons is neither trivial nor monotonous. This problem therefore requires further numerical investigation. [F1]

2. With model calculations, I have shown that plasmonically enhanced electron acceleration from a rough surface is determined by the coupling of the surface plasmon polariton and localised surface plasmon modes. In the physical model that I created, the effect of the surface roughness can be approximated with nanoellipsoids on the surface having the appropriate size distribution. With the help of the calculations based on the model, it was possible to prove that the plasmon resonance of such surface grains determine the maximal electron kinetic energies in the measured spectra. [F1]

3. I proved with further model calculations that the left-right asymmetry of the photoemission and acceleration from isolated plasmonic nanoparticles can be used to determine the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses, provided that the resonance eigenfrequency of the nanoparticle is far from the carrier frequency of the applied laser pulse. In case of resonant nanoparticles, the effect of the carrier-envelope phase is washed out because of the limited bandwidth of the plasmon resonance. [F2]

4. I delivered an experimental proof that THz radiation generated on nanostructured samples with ultrashort laser pulses is determined by plasmonically photoemitted and accelerated electrons above a certain laser peak intensity. I found that the critical intensity was around 15 GW/cm^2 . Above that intensity the photocurrent scaling is similar to the intensity scaling of the THz radiation, whereas below that intensity significant scaling differences can be observed, which can be attributed to another THz generation mechanism. In this way, I described different mechanisms of visible-THz conversion on nanostructured samples. [F3]

10. Köszönetnyilvánítás

Köszönettel tartozom témavezetőmnek Dombi Péternek a doktori munkám irányításáért, a felmerülő problémákban nyújtott segítségéért, melyek nélkül ez a disszertáció nem íródhatott volna meg.

Köszönöm Földi Péternek, Bódi Balázsnak, illetve Rácz Péter, valamint Ayadi Viktor kollégáimnak a segítségüket, illetve hasznos tanácsaikat.

Végül, de nem utolsó sorban köszönettel tartozom a családomnak azért a támogatásukért, melyben a tanulmányaim alatt mindig részesítettek.

11. Saját publikációk

Az eljárás témakörében megjelent folyóiratpublikációk:

[F1] **I. Márton**, V. Ayadi, P. Rácz, T. Stefaniuk, P. Wróbel, P. Földi, P. Dombi, Plasmonics **11**, 811 (2016).

[F2] P. Földi, **I. Márton**, N. Német, V. Ayadi, and P. Dombi, Applied Physics Letters **106**, 013111 (2015).

[F3] D. K. Polyushkin, **I. Márton**, P. Rácz, P. Dombi, E. Hendry, W. L. Barnes, Physical Review B **89**, 125426 (2014).

Az eljárás témakörében megjelent konferenciakiadványok

[K1] P. Földi, **I. Márton**, N. Német, P. Dombi: Fém nanorészecskék fotoemissziójának kontrollja rövid, plazmonikusan erősített lézerimpulzusokkal, Kvantumelektronika 2014, Budapest, Magyarország

Az eljárás témakörén kívül megjelent

folyóiratpublikációk:

[F4] P. Rácz, Zs. Pápa, **I. Márton**, J. Budai, P. Wróbel, T. Stefaniuk, C. Prietl, J. R. Krenn, P. Dombi, Nano Letters **17**, 1181 (2017).

[F5] M. Aladi, J. Bakos, I.F. Barna, A. Czitrovsky, G. Djotyan, P. Dombi, D. Dzsotjan, I. Földes, G. Hamar, P. Ignác, M. Kedves, A. Kerekes, P. Lévai, **I. Márton**, A. Nagy, D. Oszetzky, M. Pocsai, P. Rác, B. Ráczevi, J. Szigeti, Zs. Sörlei, R. Szipöcs, D. Varga, K. Varga-Umbrich, S. Varró, L. Vámos, Gy. Vesztergombi, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment **740**, 203 (2014).

[F6] M. Aladi, **I. Márton**, P. Rác, P. Dombi, I.B. Földes, High Power Laser Science and Engineering **2**, e32 (2014).

[F7] P. Dombi, A. Hörl, P. Rác, **I. Márton**, A. Trügler, J. R. Krenn, U. Hohenester, Nano Letters **13**, 674 (2013).

Az eljárás témakörén kívül megjelent

konferenciakiadványok

[K2] Cs. Lombosi, **I. Márton**, Z. Ollmann, J. Hebling, Gy. Farkas, P. Dombi, J. A. Fülöp: THz-induced strong-field electron emission from a gold surface, CLEO/Europe - EQEC 2015, München, Germany

[K3] Cs. Lombosi, **I. Márton**, Z. Ollmann, J. Hebling, Gy. Farkas, P. Dombi, J. A. Fülöp: THz-Induced Strong-Field Electron Emission from a Gold Surface, OTST 2015, San Diego, USA

[K4] Cs. Lombosi, **I. Márton**, Z. Ollmann, J. Hebling, Gy. Farkas, P. Dombi, J. A. Fülöp: THz-induced strong-field electron emission from a gold surface, Kvantumelektronika 2014, Budapest, Magyarország

[K5] P. RÁCZ, **I. Márton**, S.M. Teichmann, M.F. Ciappina, A. Thai, J. Fekete, L. Veisz, J. Biegert, P. Dombi: Ultragyors plazmonika közép-infravörös hullámhosszon Kvantumelektronika 2014, Budapest, Magyarország

[K6] P. Dombi, A. Hörl, P. RÁCZ, **I. Márton**, A. Trügler, J. R. Krenn, U. Hohenester: Ultrafast strong-field photoemission from plasmonic nanoparticles, CLEO-PR & OECC/PS 2013, Kyoto, Japan

[K7] P. Dombi, A. Hörl, P. RÁCZ, **I. Márton**, A. Trügler, J. R. Krenn, U. Hohenester: Ultrafast Strong-Field Photoemission from Plasmonic Nanoparticles, CLEO/Europe-IQEC 2013, München, Germany

12. Irodalomjegyzék

- [1] D. Strickland and G. Mourou, *Optics Communications* **56**, 219 (1985).
- [2] S. Backus, C. G. Durfee, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Review of Scientific Instruments* **69**, 1207 (1998).
- [3] O. Svelto, *Principles of Lasers* (Springer US, 2010).
- [4] R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon, *Opt. Lett.* **9**, 150 (1984).
- [5] R. L. Fork, C. H. B. Cruz, P. C. Becker, and C. V. Shank, *Opt. Lett.* **12**, 483 (1987).
- [6] A. Stingl, R. Szipöcs, M. Lenzner, C. Spielmann, and F. Krausz, *Opt. Lett.* **20**, 602 (1995).
- [7] S. T. Cundiff, *Journal of Physics D: Applied Physics* **35**, R43 (2002).
- [8] T. Tajima and J. M. Dawson, *Phys. Rev. Lett.* **43**, 267 (1979).
- [9] E. Esarey, C. B. Schroeder, and W. P. Leemans, *Reviews of Modern Physics* **81**, 1229 (2009).
- [10] J. Nuckolls, L. Wood, A. Thiessen, and G. Zimmermann, *Nature* **239**, 139 (1972).
- [11] R. Betti and O. Hurricane, *Nature Physics* **12**, 435 (2016).
- [12] T. Udem, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch, *Nature* **416**, 233 (2002).
- [13] A. H. Zewail, *Science* **242**, 1645 (1988).
- [14] P. B. Corkum and F. Krausz, *Nature Physics* **3**, 381 (2007).
- [15] M. Schenk, M. Krüger, and P. Hommelhoff, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 257601 (2010).
- [16] G. Herink, D. R. Solli, M. Gulde, and C. Ropers, *Nature* **483**, 190 (2012).
- [17] R. Bormann, M. Gulde, A. Weismann, S. V. Yalunin, and C. Ropers, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 147601 (2010).
- [18] M. Krüger, M. Schenk, and P. Hommelhoff, *Nature* **475**, 78 (2011).
- [19] A. Apolonski *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 073902 (2004).
- [20] P. Dombi *et al.*, *New Journal of Physics* **6**, 39 (2004).

- [21] H. A. Atwater, *Scientific American* **296**, 56 (2007).
- [22] A. Polman, *Science* **322**, 868 (2008).
- [23] J. A. Schuller, E. S. Barnard, W. Cai, Y. C. Jun, J. S. White, and M. L. Brongersma, *Nature Materials* **9**, 193 (2010).
- [24] H. Raether, *Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings* (Springer, 1988).
- [25] J. N. Anker, W. P. Hall, O. Lyandres, N. C. Shah, J. Zhao, and R. P. Van Duyne, *Nature Materials* **7**, 442 (2008).
- [26] Y. Wang and J. Irudayaraj, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London B: Biological Sciences* **368**, 20120026 (2012).
- [27] H. A. Atwater and A. Polman, *Nature Materials* **9**, 205 (2010).
- [28] V. E. Ferry, L. A. Sweatlock, D. Pacifici, and H. A. Atwater, *Nano Letters* **8**, 4391 (2008).
- [29] X. Gu, T. Qiu, W. Zhang, and P. Chu, *Nanoscale Research Letters* **6**, 199 (2011).
- [30] K. Okamoto, I. Niki, A. Shvartser, Y. Narukawa, T. Mukai, and A. Scherer, *Nature Materials* **3**, 601 (2004).
- [31] D. M. Koller, A. Hohenau, H. Ditlbacher, N. Galler, F. Reil, F. R. Aussenegg, A. Leitner, E. J. W. List, and J. R. Krenn, *Nature Photonics* **2**, 684 (2008).
- [32] J. Z. Zhang, *The Journal of Physical Chemistry Letters* **1**, 686 (2010).
- [33] Y. Wang, W. Srituravanich, C. Sun, and X. Zhang, *Nano Letters* **8**, 3041 (2008).
- [34] M. E. Stewart, C. R. Anderton, L. B. Thompson, J. Maria, S. K. Gray, J. A. Rogers, and R. G. Nuzzo, *Chemical Reviews* **108**, 494 (2008).
- [35] W. Srituravanich, N. Fang, C. Sun, Q. Luo, and X. Zhang, *Nano Letters* **4**, 1085 (2004).
- [36] W. Srituravanich, L. Pan, Y. Wang, C. Sun, D. B. Bogy, and X. Zhang, *Nature Nanotechnology* **3**, 733 (2008).

- [37] Z.-W. Liu, Q.-H. Wei, and X. Zhang, *Nano Letters* **5**, 957 (2005).
- [38] S. Lal, S. Link, and N. J. Halas, *Nature Photonics* **1**, 641 (2007).
- [39] S. I. Bozhevolnyi, V. S. Volkov, E. Devaux, Laluet, and T. W. Ebbesen, *Nature* **440**, 508 (2006).
- [40] S. A. Maier, P. G. Kik, H. A. Atwater, S. Meltzer, E. Harel, B. E. Koel, and A. A. G. Requicha, *Nature Materials* **2**, 229 (2003).
- [41] E. Ozbay, *Science* **311**, 189 (2006).
- [42] L. Martin-Moreno, *Nature Physics* **5**, 457 (2009).
- [43] R. G. Hobbs, Y. Yang, A. Fallahi, P. D. Keathley, E. De Leo, F. X. Kärtner, W. S. Graves, and K. K. Berggren, *ACS Nano* **8**, 11474 (2014).
- [44] R. K. Li *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 074801 (2013).
- [45] A. Polyakov, C. Senft, K. F. Thompson, J. Feng, S. Cabrini, P. J. Schuck, H. A. Padmore, S. J. Peppernick, and W. P. Hess, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 076802 (2013).
- [46] V. A. Lobastov, R. Srinivasan, and A. H. Zewail, *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **102**, 7069 (2005).
- [47] A. H. Zewail, *Science* **328**, 187 (2010).
- [48] V. A. Lobastov, R. Srinivasan, B. M. Goodson, C.-Y. Ruan, J. S. Feenstra, and A. H. Zewail, *The Journal of Physical Chemistry A* **105**, 11159 (2001).
- [49] T. Tsang, T. Srinivasan-Rao, and J. Fischer, *Opt. Lett.* **15**, 866 (1990).
- [50] T. Tsang, T. Srinivasan-Rao, and J. Fischer, *Phys. Rev. B* **43**, 8870 (1991).
- [51] H. Chen, J. Boneberg, and P. Leiderer, *Phys. Rev. B* **47**, 9956 (1993).
- [52] J. Zawadzka, D. A. Jaroszynski, J. J. Carey, and K. Wynne, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **445**, 324 (2000).

- [53] J. Zawadzka, D. A. Jaroszynski, J. J. Carey, and K. Wynne, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2130 (2001).
- [54] J. Kupersztych, P. Monchicourt, and M. Raynaud, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5180 (2001).
- [55] S. E. Irvine, A. Dechant, and A. Y. Elezzabi, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 184801 (2004).
- [56] S. A. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications* (Springer US, 2007).
- [57] S. E. Irvine, Ph.D. értekezés, University of Alberta, 2007.
- [58] M. Born, E. Wolf, and A. B. Bhatia, *Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light* (Cambridge University Press, 1999).
- [59] J. M. Pitarke, V. M. Silkin, E. V. Chulkov, and P. M. Echenique, *Reports on Progress in Physics* **70**, 1 (2007).
- [60] J. Nador *et al.*, *Opt. Express* **24**, 4812 (2016).
- [61] C. F. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles* (Wiley, 1983).
- [62] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics* (Wiley, 1998).
- [63] V. Myroshnychenko, J. Rodriguez-Fernandez, I. Pastoriza-Santos, A. M. Funston, C. Novo, P. Mulvaney, L. M. Liz-Marzan, and F. J. Garcia de Abajo, *Chemical Society Reviews* **37**, 1792 (2008).
- [64] G. Beer, I. Smith, and C. Duenser, *The Boundary Element Method with Programming: For Engineers and Scientists* (Springer, 2008).
- [65] A. Taflove and S. C. Hagness, *Computational Electrodynamics: The Finite-difference Time-domain Method* (Artech House, 2000).
- [66] N. J. Halas, S. Lal, W.-S. Chang, S. Link, and P. Nordlander, *Chemical Reviews* **111**, 3913 (2011).
- [67] H. Hertz, *Annalen der Physik* **267**, 983 (1887).
- [68] W. Hallwachs, *Annalen der Physik* **270**, 731 (1888).

- [69] A. Einstein, *Annalen der Physik* **322**, 132 (1905).
- [70] G. Farkas and Z. G. Horváth, *Optics Communications* **12**, 392 (1974).
- [71] G. Farkas and C. Tóth, *Phys. Rev. A* **41**, 4123 (1990).
- [72] P. Hommelhoff, Y. Sortais, A. Aghajani-Talesh, and M. A. Kasevich, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 077401 (2006).
- [73] P. Hommelhoff, C. Kealhofer, and M. A. Kasevich, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 247402 (2006).
- [74] L. V. Keldysh, *Soviet Physics JETP* **20**, 1307 (1965).
- [75] G. L. Yudin and M. Y. Ivanov, *Phys. Rev. A* **64**, 013409 (2001).
- [76] M. Büttiker and R. Landauer, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1739 (1982).
- [77] G. Farkas, S. L. Chin, P. Galarneau, and F. Yergeau, *Optics Communications* **48**, 275 (1983).
- [78] C. Tóth, G. Farkas, and K. L. Vodopyanov, *Applied Physics B* **53**, 221 (1991).
- [79] S. M. Teichmann *et al.*, *Scientific Reports* **5**, 1 (2015).
- [80] U. Becker and D. A. Shirley, *VUV and Soft X-Ray Photoionization* (Springer US, 1996).
- [81] L. A. Lompre, A. L'Huillier, G. Mainfray, and C. Manus, *Physics Letters A* **112**, 319 (1985).
- [82] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N. K. Rahman, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1127 (1979).
- [83] H. Akagi, T. Otobe, A. Staudte, A. Shiner, F. Turner, R. Dörner, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *Science* **325**, 1364 (2009).
- [84] N. B. Delone and V. P. Kraĭnov, *Physics-Usppekhi* **41**, 469 (1998).
- [85] A. Scrinzi, M. Geissler, and T. Brabec, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 706 (1999).
- [86] P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
- [87] F. Krausz and M. Ivanov, *Reviews of Modern Physics* **81**, 163 (2009).
- [88] G. Farkas and C. Tóth, *Physics Letters A* **168**, 447 (1992).

- [89] P. H. Bucksbaum, *Science* **317**, 766 (2007).
- [90] M. Uiberacker *et al.*, *Nature* **446**, 627 (2007).
- [91] A. L. Cavalieri *et al.*, *Nature* **449**, 1029 (2007).
- [92] U. Eichmann, T. Nubbemeyer, H. Rottke, and W. Sandner, *Nature* **461**, 1261 (2009).
- [93] P. Dombi, P. Rácz, and B. Bódi, *Laser and Particle Beams* **27**, 291 (2009).
- [94] S. E. Irvine and A. Y. Elezzabi, *Phys. Rev. A* **73**, 013815 (2006).
- [95] P. Dombi and P. Rácz, *Opt. Express* **16**, 2887 (2008).
- [96] P. Rácz, Ph.D. értekezés, Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, 2012.
- [97] P. Rácz and P. Dombi, *Phys. Rev. A* **84**, 063844 (2011).
- [98] P. Dombi, A. Hörl, P. Rácz, I. Márton, A. Trügler, J. R. Krenn, and U. Hohenester, *Nano Letters* **13**, 674 (2013).
- [99] S. V. Yalunin, G. Herink, D. R. Solli, M. Krüger, P. Hommelhoff, M. Diehn, A. Munk, and C. Ropers, *Annalen der Physik* **525**, L12 (2013).
- [100] J. Bösenberg, *Physics Letters A* **37**, 439 (1971).
- [101] C. Macek, A. Otto, and W. Steinmann, *Physica Status Solidi (b)* **51**, K59 (1972).
- [102] H. W. Rudolf and W. Steinmann, *Physics Letters A* **61**, 471 (1977).
- [103] S. E. Irvine and A. Y. Elezzabi, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 264102 (2005).
- [104] Y. Chu and K. B. Crozier, *Opt. Lett.* **34**, 244 (2009).
- [105] W. Ren, Y. Dai, H. Cai, H. Ding, N. Pan, and X. Wang, *Opt. Express* **21**, 10251 (2013).
- [106] M. Sarkar, M. Besbes, J. Moreau, J.-F. Bryche, A. Olivéro, G. Barbillon, A.-L. Coutrot, B. Bartenlian, and M. Canva, *ACS Photonics* **2**, 237 (2015).
- [107] T. Stefaniuk, P. Wróbel, E. Górecka, and T. Szoplík, *Nanoscale Research Letters* **9**, 153 (2014).
- [108] T. Stefaniuk, P. Wróbel, P. Trautman, and T. Szoplík, *Applied Optics* **53**, B237 (2014).

- [109] P. Wróbel, T. Stefaniuk, M. Trzcinski, A. A. Wronkowska, A. Wronkowski, and T. Szoplik, *ACS Applied Materials & Interfaces* **7**, 8999 (2015).
- [110] A. Trügler, J.-C. Tinguely, G. Jakopic, U. Hohenester, J. R. Krenn, and A. Hohenau, *Phys. Rev. B* **89**, 165409 (2014).
- [111] A. Trügler, J.-C. Tinguely, J. R. Krenn, A. Hohenau, and U. Hohenester, *Phys. Rev. B* **83**, 081412 (2011).
- [112] P. Rácz, S. E. Irvine, M. Lenner, A. Mitrofanov, A. Baltuška, A. Y. Elezzabi, and P. Dombi, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 111116 (2011).
- [113] M. Aeschlimann, C. A. Schmuttenmaer, H. E. Elsayed-Ali, R. J. D. Miller, J. Cao, Y. Gao, and D. A. Mantell, *The Journal of Chemical Physics* **102**, 8606 (1995).
- [114] P. Dombi *et al.*, *Opt. Express* **18**, 24206 (2010).
- [115] R. C. Word, J. Fitzgerald, and R. Könenkamp, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 041106 (2011).
- [116] R. F. Bunshah, *Handbook of Deposition Technologies for Films and Coatings: Science, Technology, and Applications* (Noyes Publications, 1994).
- [117] A. Pimpin and W. Srituravanich, *Engineering Journal* **16**, 37 (2011).
- [118] P. Colson, C. Henrist, and R. Cloots, *Journal of Nanomaterials* **2013**, 1 (2013).
- [119] E. Mårzell *et al.*, *Nano Letters* **15**, 6601 (2015).
- [120] P. Dombi and P. Antal, *Laser Physics Letters* **4**, 538 (2007).
- [121] D. C. Jiles, *Introduction to Magnetism and Magnetic Materials, Second Edition* (Taylor & Francis, 1998).
- [122] C. L. Haynes and R. P. V. Duyne, *The Journal of Physical Chemistry B* **105**, 5599 (2001).
- [123] G. Gerlach and K. J. Wolter, *Bio and Nano Packaging Techniques for Electron Devices: Advances in Electronic Device Packaging* (Springer Berlin Heidelberg, 2012).

- [124] U. C. Fischer and H. P. Zingsheim, *Journal of Vacuum Science and Technology* **19**, 881 (1981).
- [125] C. Haginoya, M. Ishibashi, and K. Koike, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2934 (1997).
- [126] W. A. Murray, S. Astilean, and W. L. Barnes, *Phys. Rev. B* **69**, 165407 (2004).
- [127] I. Márton, V. Ayadi, P. Rácz, T. Stefaniuk, P. Wróbel, P. Földi, and P. Dombi, *Plasmonics* **11**, 811 (2016).
- [128] A. W. Dweydari and C. H. B. Mee, *Physica Status Solidi (a)* **27**, 223 (1975).
- [129] H. B. Michaelson, *Journal of Applied Physics* **48**, 4729 (1977).
- [130] P. Földi, I. Márton, N. Német, V. Ayadi, and P. Dombi, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 013111 (2015).
- [131] B. Piglosiewicz, S. Schmidt, D. J. Park, J. Vogelsang, P. Groß, C. Manzoni, P. Farinello, G. Cerullo, and C. Lienau, *Nature Photonics* **8**, 37 (2014).
- [132] G. Ramakrishnan and P. C. M. Planken, *Opt. Lett.* **36**, 2572 (2011).
- [133] G. H. Welsh and K. Wynne, *Opt. Express* **17**, 2470 (2009).
- [134] D. K. Polyushkin, E. Hendry, E. K. Stone, and W. L. Barnes, *Nano Letters* **11**, 4718 (2011).
- [135] D. K. Polyushkin, I. Márton, P. Rácz, P. Dombi, E. Hendry, and W. L. Barnes, *Phys. Rev. B* **89**, 125426 (2014).
- [136] K. Sakai, *Terahertz Optoelectronics* (Springer, 2005).
- [137] D. K. Polyushkin, Ph.D. értekezés, University of Exeter, 2013.