

Photoeffekt in starken Feldern

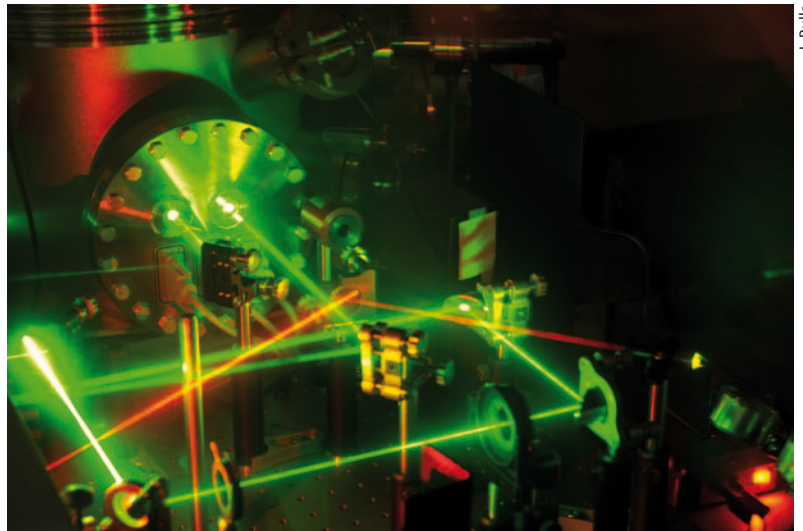
Wie metallische Nanostrukturen neuartige photoelektrische Phänomene ermöglichen.

Claus Ropers

Der photoelektrische Effekt – kurz Photoeffekt – zählt zu den am besten verstandenen Wechselwirkungen von Licht mit Materie, und seine elementaren Eigenschaften werden bereits im Schulunterricht behandelt. In starken Laserfeldern beobachtet man jedoch ein hiervon drastisch abweichendes Verhalten, das allen weithin bekannten Paradigmen des herkömmlichen Photoeffekts widerspricht. Nanostrukturen bieten dabei besonders faszinierende Systeme, um derartige Prozesse zu studieren und für Anwendungen nutzbar zu machen.

Der Photoeffekt nimmt eine herausragende Rolle im Umbruch der Physik zu Beginn des 20. Jahrhunderts ein. An ihm spitzte sich, ähnlich wie bei der Schwarzkörperstrahlung, besonders deutlich der Widerspruch zwischen der Erwartung der klassischen Physik und den experimentellen Beobachtungen zu. Nach der ursprünglichen Entdeckung der damals als „Lichtelektrizität“ bezeichneten Phänomene durch Heinrich Hertz und Wilhelm Hallwachs machte besonders Philipp Lenard quantitative Bestimmungen, die mit dem damaligen physikalischen Verständnis unvereinbar schienen. Einige Zitate aus Lenards Arbeit von 1902 zeigen dies besonders deutlich. In seinen Experimenten vermaß er die Energie der im Photoeffekt emittierten Elektronen in Abhängigkeit von der Lichtintensität. Seine Erwartung beschrieb er so [1]: Der „vom Lichte stammende Teil der Anfangsgeschwindigkeit ... müsste innerhalb der letzten halben bez. ganzen Resonanzschwingung erworben worden sein, er müsste also mit der Lichtintensität steigen.“ Das Experiment jedoch zeigte anderes: „Es sind aber die Größen der Anfangsgeschwindigkeiten unabhängig von der Intensität des Lichtes“. Bekanntermaßen löste erst Einstein 1905 mit seiner Quantenhypothese dieses Dilemma auf, indem er postulierte, dass die Elektronen des Festkörpers die Energie des Lichts in unteilbaren Energiequanten aufnehmen [2].

Heute dient der Photoeffekt routinemäßig als präzise analytische Methode der Festkörper- und Oberflächenphysik. Wir können inzwischen über zeit-, winkel- und energieaufgelöste Photoemissionspektroskopie genaue Einblicke in die elektronischen Eigenschaften von Festkörpern gewinnen [3]. Hierbei sind die quantenmechanischen Grundlagen des Photoeffekts eine unverzichtbare Selbstverständlichkeit.



Blick auf den experimentellen Aufbau zur Kurzzeitspektroskopie an Nanostrukturen mit der Ultrahochvakuumkammer im Hintergrund und dem optischen Strahlengang im Vordergrund.

Dennoch stellt sich dem aufmerksamen Beobachter die Frage, warum die Beschreibung des Photoeffekts im Rahmen der klassischen Physik überhaupt scheitert. Was soll grundsätzlich falsch daran sein, anzunehmen, Elektronen würden als geladene Teilchen in einem oszillierenden elektromagnetischen Lichtfeld hin- und herbeschleunigt? Und ist es irrig anzunehmen, dass dabei ihre kinetische Energie mit der Stärke des Lichtfeldes zunehmen sollte? Eigentlich nicht! Warum also wird dies nicht beobachtet? Diese Frage lässt sich mit einfachen Mitteln beantworten: Eine knappe

KOMPAKT

- Metallische Nanostrukturen ermöglichen durch geometrische und plasmonische Feldverstärkungen eine lokale Überhöhung optischer Intensitäten.
- Die Anregung mit ultrakurzen Laserpulsen verursacht nichtlineare Photoeffekte und eröffnet neue Möglichkeiten, die Bewegung von Elektronen zu kontrollieren.
- Beim „Starkfeld“-Photoeffekt lassen infrarote Felder die Elektronen aus der Oberfläche heraustunneln. Die Beschleunigung im oszillierenden elektrischen Feld führt zu Abhängigkeiten von Frequenz und Intensität, die sich gänzlich vom üblichen Photoeffekt unterscheiden.
- Mit Nanostrukturen erzeugte ultrakurze Elektronenpulse eignen sich wegen ihrer Kohärenz für die zeitaufgelöste Elektronenmikroskopie und -beugung.

Prof. Dr. Claus Ropers, Universität Göttingen, IV. Physikal. Institut, Friedrich-Hund-Platz 1, 37077 Göttingen – Preisträgerartikel anlässlich der Verleihung des Walter-Schottky-Preises 2013 auf der DPG-Jahrestagung in Regensburg.

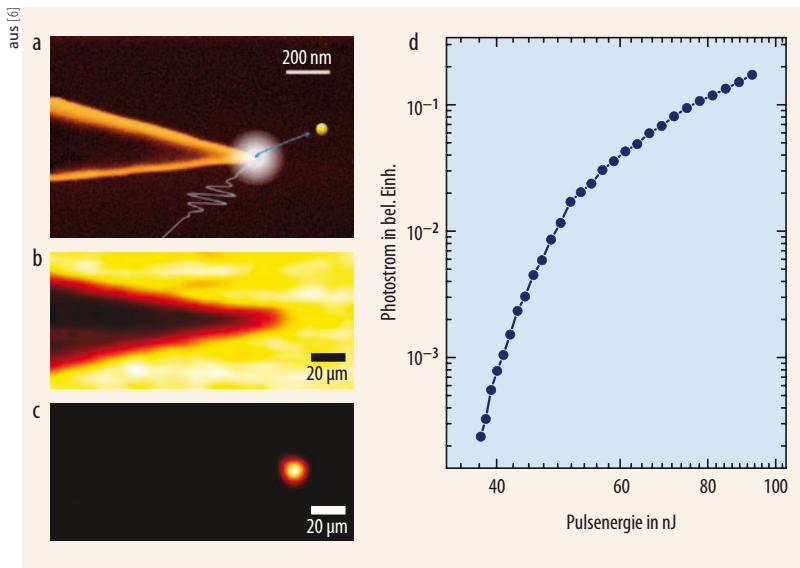


Abb. 1 Die Beleuchtung einer scharfen Goldspitze löst die Emission von Elektronen im Bereich des Apex aus (a, Schemazeichnung und elektronenmikroskopische Aufnahme einer Spitze). Der gemessene Schattenwurf einer durch die Fokusebene gerasterten Spitze (b) demonstriert mit dem synchron gemessenen Photostrom (c) die Lokalisierung der Elektronenemission auf den Apex bei 3,8 μm Wellenlänge. Der Verlauf des Photostroms mit der Laserleistung weist den Tunnelprozess im feldverstärkten Bereich nach (d).

Rechnung (Infokasten „Ponderomotorische Energie“) zeigt, dass die charakteristische Wechselwirkungsenergie freier Elektronen mit dem elektrischen Lichtfeld für herkömmliche Intensitäten schlicht viel zu gering ist, um sie zu messbaren Energien zu beschleunigen. Diese „ponderomotorische Energie“ erreicht für sichtbares Licht erst ab Intensitäten von 10¹³ W/cm² die Größenordnung typischer metallischer Austrittsarbeiten von einigen Elektronenvolt, und sie ist vernachlässigbar klein für Intensitäten, wie sie sich beispielsweise mit dem fokussierten Licht einer Bogenlampe auf einer Metalloberfläche erzeugen lassen. Damit kann sie keinen Beitrag zur Energie der Elektronen leisten, und der quantenmechanische Übergang bei der Photonabsorption ist die einzige Möglichkeit, die Energiebarriere an der Metalloberfläche zu überwinden. Beim üblichen Photoeffekt handelt es sich also in gewisser Weise um den Grenzfall niedriger Intensitäten.

Neue Phänomene in starken Feldern

Bei höheren Lichtintensitäten, wie sie heute mit leistungsfähigen und gepulsten Lasern möglich sind, treten neben dem üblichen Photoeffekt auch nichtlineare Phänomene auf, die zur Emission von Elektronen führen können. So wird bei der Multiphoton-Photoemission die zur Überwindung der Energiebarriere

an der Oberfläche nötige Austrittsarbeit durch gleichzeitige Absorption mehrerer Photonen erreicht. Die Energie der so emittierten Elektronen ergibt sich aus einem leicht angepassten photoelektrischen Gesetz (Infokasten „Multiphoton- und Starkfeld-Photoeffekt“), während die ponderomotorische Energie auch hier noch keine Rolle spielt. Erst bei Feldstärken, in denen die Wechselwirkungsenergie der Elektronen mit dem Lichtfeld die Austrittsarbeit des Festkörpers übersteigt, ist ein grundlegend anderes physikalisches Bild erforderlich. Hier lässt sich die Emission nicht länger als „photonengetriebener“, sondern als „feldgetriebener“ Prozess verstehen. Konkret erzeugt das oszillierende elektrische Feld eine endlich ausgedehnte Potentialbarriere an der Oberfläche, durch die ein Elektron mit gewisser Wahrscheinlichkeit quantenmechanisch tunneln kann. Nach dem Tunnelvorgang ist das Elektron außerhalb des Festkörpers weiterhin dem starken Feld ausgesetzt und wird in ihm beschleunigt. Je nach Dauer des Laserfeldes und Zeitpunkt, in dem die Emission stattgefunden hat, kann es in dieser Beschleunigung ein Mehrfaches der ponderomotorischen Energie aufnehmen. Moderne Laser können fokussiert eine ponderomotorische Energie von vielen tausend Elektronenvolt erzeugen. Damit erschließt sich uns das Regime der Starkfeld-Photoemission, in dem die Wechselwirkung der Elektronen mit dem Laserlicht um ein Vielfaches ihre Bindungsstärke mit Atomen, Molekülen und Festkörpern übersteigt. In der Atom- und Molekülphysik ist diese Konstellation bereits seit Jahrzehnten Inhalt aktiver Forschung. Das gesamte Gebiet der Attosekundenphysik basiert letztlich auf Methoden, die Starkfeld-Effekte nutzen [4].

An Festkörperoberflächen hat es jedoch erst vereinzelt Untersuchungen gegeben, in denen der Übergang zur Starkfeld-Physik beobachtbar war. Schwierigkeiten im Experiment und bei der Interpretation ergeben sich hierbei nicht zuletzt aus der möglichen laserinduzierten Zerstörung der Oberfläche oder der gegenseitigen Abstoßung der emittierten Elektronen. Auch zeigen Oberflächen häufig strukturelle Unregel-

PONDEROMOTORISCHE ENERGIE

Wir betrachten die Bewegungsgleichung eines in einem oszillierenden elektrischen Feld getriebenen Elektrons. Einmalige Integration ergibt die Geschwindigkeit des Teilchens:

$$m\ddot{x} = -eE \cos \omega t \\ \Rightarrow \dot{x} = -\frac{eE}{m\omega} \sin \omega t + v_0$$

Wir vernachlässigen nun eine mögliche Anfangsgeschwindigkeit v_0 und

definieren die **ponderomotorische Energie** U_p als die zeitlich gemittelte kinetische Energie des Elektrons in seiner Schwingungsbewegung:

$$U_p := \frac{1}{2} m \langle \dot{x}^2 \rangle = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2}$$

Diese Energie erreicht für typische Frequenzen erst bei sehr hohen Intensitäten signifikante Werte in der Größenordnung einiger Elektronenvolt.

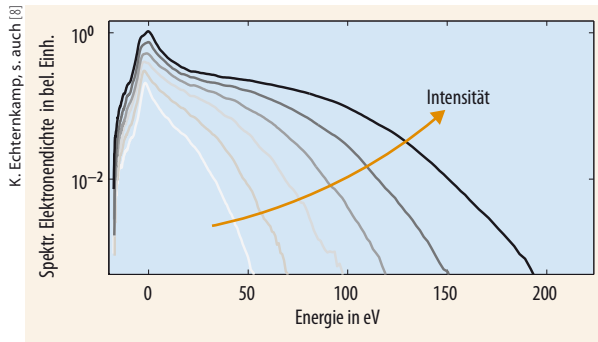


Abb. 2 Im Experiment zeigt sich eine deutliche Verbreiterung der Energiespektren mit wachsender Intensität. Wellenlängen im mittleren Infrarot (hier $5 \mu\text{m}$ bei einer Pulsdauer von ca. 100 fs) erlauben bei moderaten Intensitäten hohe Beschleunigungen auf Energien von mehreren hundert eV. Entsprechende Verteilungen lassen sich im Rahmen des Starkfeld-Modells durch Tunnelemission und anschließende Beschleunigung berechnen.

mäßigkeiten, die zu räumlichen Fluktuationen der Lichtintensität führen. Einzelne optische Nanostrukturen bieten hier eine neuartige Möglichkeit, in einer wohldefinierten Geometrie unter kontrollierten Bedingungen Phänomene der Starkfeldphysik zu untersuchen.

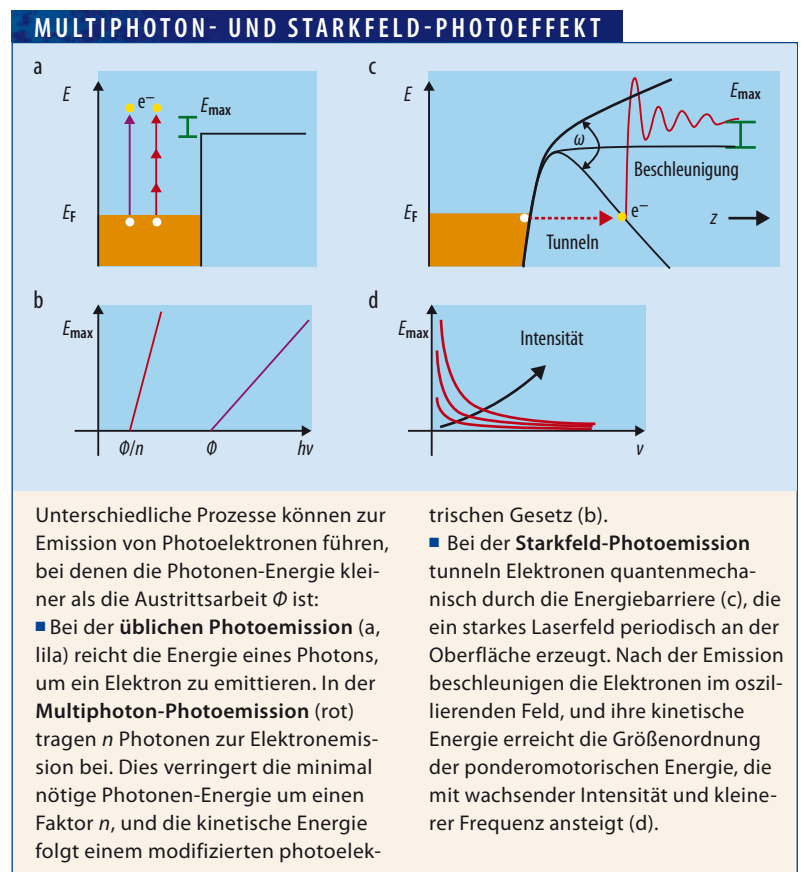
Vielseitige Nanostrukturen

In den vergangenen Jahren haben sich besonders einzelne nanometerscharfe Metallspitzen aus Gold oder Wolfram als sehr geeignete Objekte erwiesen, um hoch nichtlineare Photoemissionsprozesse zu untersuchen [5–8]. Hierfür gibt es diverse Gründe: Sie besitzen die Eigenschaft, mit der so genannten Feldüberhöhung das einfallende Licht lokal zu verstärken. Dies erleichtert den Zugang zum Starkfeld-Regime mit weniger intensiven Laserpulsen und beschränkt die Prozesse auf den Apex der Struktur. Außerdem erlaubt es die scharfe Form einer Spitze, über das Anlegen einer zusätzlichen elektrischen Spannung hohe statische Felder anzuwenden. Damit lassen sich verschiedene mikroskopische Bedingungen schaffen und unterschiedliche Emissionsprozesse ansteuern. Nicht zuletzt vermindert eine Spitze mit den divergierenden Trajektorien verschiedener Elektronen den nachteiligen Einfluss möglicher Raumladungseffekte, welche die gleichzeitige Emission vieler Elektronen auslösen kann. Die oben beschriebenen nichtlinearen Prozesse lassen sich so recht präzise untersuchen, beispielsweise über die Intensitätsabhängigkeit des Elektronenstroms (**Abb. 1**).

Da Ladung und Masse des Elektrons Naturkonstanten sind, hat die ponderomotorische Energie nur zwei variable Parameter: Sie wächst mit der Intensität und fällt mit steigender Lichtfrequenz. Um besonders tief in den Bereich der Starkfeld-Effekte vordringen zu können, lässt sich entweder die Intensität erhöhen oder die Lichtfrequenz drosseln. Ersteres ist in der Realität durch die Zerstörschwelle der untersuchten Nanostruktur begrenzt. Die Frequenz hingegen ist durch nichtlineare optische Mischprozesse sehr variabel

einsetzbar. Ultrakurze Laserpulse im mittleren Infrarot (einige Mikrometer Wellenlänge) haben sich hierbei als besonders geeignet erwiesen [8], um Elektronen selektiv aus dem Apex einer scharfen Spitze herausschleunigen zu lassen (**Abb. 1**). Dabei lässt sich eine Beschleunigung der Elektronen beobachten, die deutlich mit der Intensität anwächst (**Abb. 2**). Man findet breite Energieverteilungen, die von unterschiedlichen Emissionszeiten innerhalb einer Oszillationsperiode herrühren: Ein zu einem frühen Zeitpunkt in der Oszillation emittiertes Elektron wird über einen längeren Zeitraum beschleunigt als eines, welches später austritt. Die maximalen Energien von hunderten Elektronenvolt entsprechen dabei der Energie von mehr als tausend Photonen. In diesem Bereich verliert der Photonenbegriff seine hervorgehobene Bedeutung, und das klassische oszillierende Feld beschreibt gänzlich die Elektronemission. Der besondere Kontrast zu den Skalierungen des Photoeffekts tritt in Messungen zutage, in denen die maximale Elektronenenergie als Funktion der Wellenlänge bzw. Frequenz gemessen wird. Es zeigt sich, dass geringere Frequenzen – wie klassisch erwartet und im krassen Gegensatz zum üblichen Photoeffekt – für eine gegebene Feldstärke die Elektronen zu deutlich höheren Energien treiben (**Abb. 3**). Der Grund liegt in den bei niedrigen Frequenzen längeren Beschleunigungsphasen.

Allerdings treten an Nanostrukturen interessante Besonderheiten auf, die mit der starken Lokalisierung der optischen Nahfelder verknüpft sind. So stößt das Anwachsen der Energie bei immer geringeren Frequenzen an seine Grenzen, sobald die Elektronen



innerhalb eines Bruchteils der Oszillationsperiode aus der feldverstärkten Region am Apex der Spitze heraustrreten. Unter diesen Bedingungen sättigt die Endenergie auf einem quasistatischen Wert und wird unabhängig von der Frequenz [8]. Die Trajektorien der Elektronen in dem Übergangsbereich nehmen dabei komplexe Verläufe an, die vom Emissionszeitpunkt und der raumzeitlichen Feldverteilung abhängen (Abb. 3). Insofern betrachten wir an Nanostrukturen und mit infraroten Lichtfeldern also einen dem üblichen Photoeffekt entgegengesetzten klassischen Grenzfall, in dem die Photonen-Energie irrelevant wird und allein die Feldstärke die Dynamik bestimmt.

Kontrolle und Anwendungen

Die obigen Untersuchungen haben gezeigt, dass sich die Trajektorien von Elektronen auf ultrakurzen Zeitskalen und innerhalb von optischen Nahfeldern stark mit der Wahl der Frequenz und Intensität des Lichts beeinflussen lassen. In einem nächsten Schritt versuchen wir nun, mit der Überlagerung verschiedener Laserpulse ein zusätzliches Maß an Kontrolle zu erlangen. In Anlehnung an vorgeschlagene Prinzipien der zeit aufgelösten Mikroskopie plasmonischer Anregungen [9] haben wir in kürzlich durchgeführten Experimenten [10] niederfrequente Terahertz-Pulse (Wellenlänge $200\ \mu\text{m}$) genutzt, um sowohl die Stärke der Nanostruktur-Photoemission eines zweiten Laserpulses als auch die Energie der emittierten Elektronen und selbst die Breite der Energieverteilung nahezu beliebig zu steuern. Dies wird für die im Folgenden beschriebenen Konzepte relevant werden.

Die wachsenden Möglichkeiten, gezielt Elektronenpulse aus Nanostrukturen zu emittieren, ermöglichen

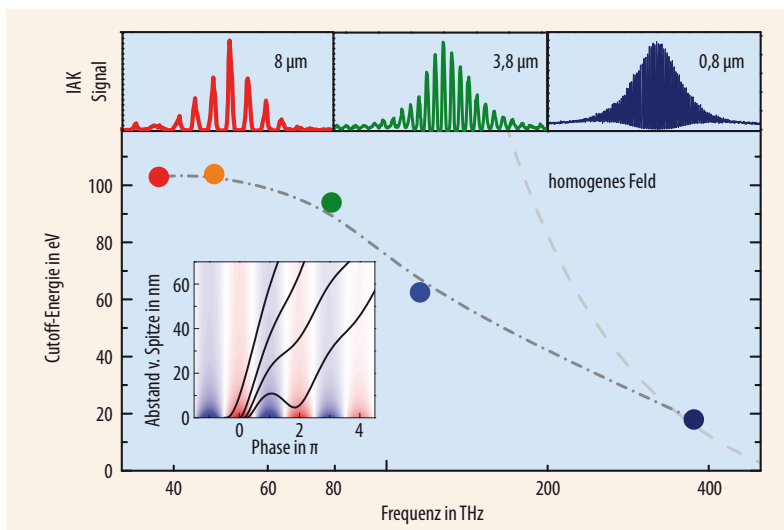


Abb. 3 Mit Verringerung der Frequenz sättigt die maximale Elektronenenergie (Punkte) entgegen einer Skalierung mit der ponderomotiven Energie (gestrichelt). Ursache dafür ist das an der Nanostruktur stark lokalisierte Feld, aus dem die Elektronen innerhalb eines Bruchteils

der Oszillationsperiode entkommen können – wie die simulierten Trajektorien (Inset) zeigen. Die anregenden Laserpulse verschiedener Frequenzen werden durch „interferometrische Autokorrelation“ (IAK) über den nichtlinearen Photostrom charakterisiert (obere Reihe).

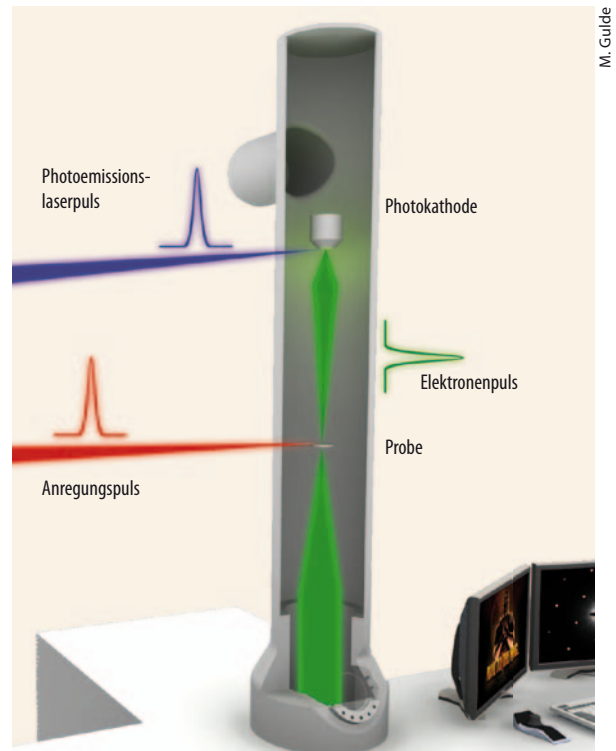


Abb. 4 Prinzip der ultraschnellen Elektronenmikroskopie: Ein kurzer Laserpuls regt eine Probe an und löst dabei eine strukturelle oder elektronische Reaktion aus. Ein zweiter Laserpuls erzeugt in einer Photokathode einen Elektronenpuls, der die strukturellen Veränderungen der Probe abbildet. Über die Variation des Ankunftszeitpunkts des Elektronenpulses wird die Dynamik des ausgelösten Prozesses aufgezeichnet (vgl. auch [15]). Nanostrukturen bieten hierbei herausragende Eigenschaften als Quelle ultrakurzer und kohärenter Elektronenpulse.

zukünftig völlig neuartige Anwendungen im Bereich der zeitaufgelösten Elektronenabbildung und -spektroskopie. Derzeit werden verschiedene Techniken der zeitaufgelösten Elektronenmikroskopie und Elektronenbeugung entwickelt, die in Pump-Tast-Schemata die strukturelle und elektronische Dynamik auf der atomaren Skala abbilden können (Abb. 4). Der Vorteil von Nanostruktur-Quellen in diesen Anwendungen ergibt sich aus mindestens zwei ihrer Besonderheiten: Sie weisen aufgrund der geringen nanometrischen Ausdehnung eine sehr hohe räumliche Kohärenz auf, die hervorragende Abbildungs- und Fokussiereigenschaften mit sich bringt. Zudem bedingt die scharfe Spitzenform auch die Möglichkeit, statische Beschleunigungsfelder für die emittierten Elektronen auf engem Raum zu konzentrieren. Dies ermöglicht ausgesprochen kurze Elektronenpulse und eine höhere zeitliche Präzision als bisherige Ansätze auf der Basis flächiger Kathoden. Insbesondere die Multiphoton-Photoemission aus Nanostrukturen ist dabei aufgrund ihrer wohldefinierten Energieabhängigkeit (Infokasten „Multiphoton- und Starkfeld-Photoeffekt“) bei gleichzeitiger nichtlinearer Lokalisierung vielversprechend.

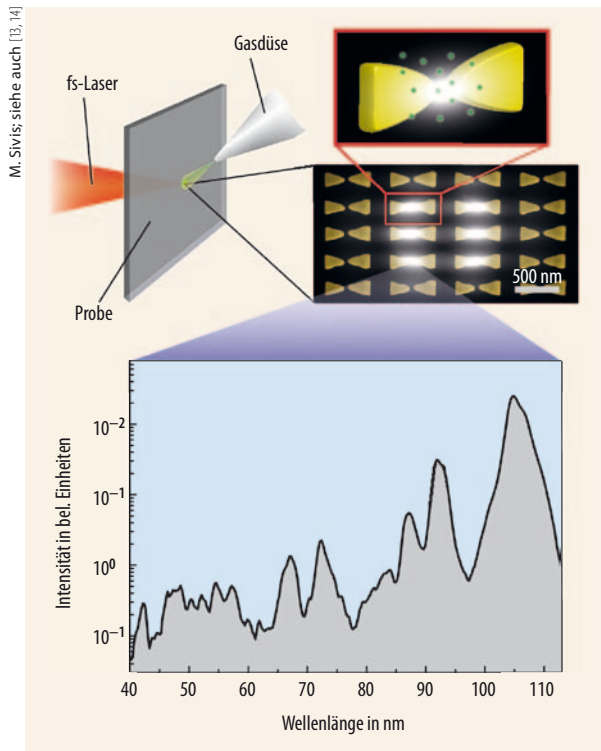


Abb. 5 Mit Hilfe von Nanostrukturen und einem Gasstrahl lässt sich extrem ultraviolette Strahlung (EUV) erzeugen (oben). Argon-Gasatome fluoreszieren im feldverstärkten Gebiet zwischen den Spitzen in einer Anordnung feldverstärkender optischer Antennen (unten: charakteristisches EUV-Spektrum).

Ausblick

Die bisherigen Ergebnisse lassen erwarten, neben der Photoelektronen-Emission auch weitere Starkfeld-Effekte in Nanostrukturen beobachten und nutzen zu können. Allerdings ergeben sich aus der geringen Größe von Nanostrukturen auch fundamentale Beschränkungen in der Licht-Materie-Wechselwirkung. Dies wird besonders deutlich am prominentesten Starkfeld-Effekt, der Erzeugung hoher harmonischer Strahlung (High-Harmonic Generation, HHG), also der Bildung „optischer Obertöne“ in einer nichtlinearen Wechselwirkung von typischerweise Edelgasatomen mit intensiven Lichtfeldern [4]. Große Hoffnungen lagen in den letzten Jahren auf Ansätzen, die diesen Prozess der kohärenten Erzeugung hochenergetischer Strahlung in Nanostrukturen verstärken [11, 12]. Wie sich gezeigt hat, reicht die lokale Feldverstärkung in bestimmten plasmonischen Strukturen zwar prinzipiell aus, um den HHG-Prozess auszulösen. Das geringe Gesamtvolumen führt jedoch dazu, dass anstelle kohärenter Strahlung primär eine ungerichtete Fluoreszenz im extremen UV-Spektralbereich entsteht (Abb. 5) [13, 14]. Wenngleich sich also die erhoffte kohärente Strahlungserzeugung vorerst nicht ergab, so ließen sich die Eigenschaften dieser Fluoreszenz doch unerwarteterweise nutzen, und zwar zur quantitativen Feldstärkemessung mit den Edelgas-Atomen als lokaler Sonde.

Auch in diesem Fall zeigt sich: Ein detaillierteres Verständnis der Besonderheiten von Starkfeld-Effekten in Nanostrukturen ist weiterhin vonnöten. Feldver-

stärkung und räumliche Lokalisierung sind dabei zwei Seiten derselben Medaille, die aber unterschiedliche charakteristische Einflüsse auf die Beobachtbarkeit und die Skalierung relevanter Phänomene haben. Mit diesen neuen Freiheitsgraden lassen sich zukünftig verstärkt Kontrollstrategien entwickeln, um die ultraschnelle Dynamik freier und gebundener Elektronen in Nanostrukturen immer gezielter beobachten und beeinflussen zu können. Neben fundamentalen Einsichten ergeben sich dabei beispielsweise in der zeitaufgelösten Abbildung mit Elektronen auch sehr attraktive wissenschaftliche Anwendungen.

Danksagung

Ich möchte meiner Arbeitsgruppe einen großen Dank für ihren motivierten Einsatz und ihre wissenschaftliche Kreativität aussprechen. Für die hier gezeigten Arbeiten sind Georg Herink und Murat Sivis besonders hervorzuheben. Die dargestellten Projekte werden in weiten Teilen durch die Förderung der DFG ermöglicht.

Literatur

- [1] P. Lenard, Ann. Phys. **313**, 149 (1902)
- [2] A. Einstein, Ann. Phys. **322**, 132 (1905)
- [3] S. Hüfner, Photoelectron Spectroscopy, Springer (2003)
- [4] F. Krausz und M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. **81**, 163 (2009)
- [5] R. Bormann, M. Gulde, A. Weismann, S. V. Yalunin und C. Ropers, Phys. Rev. Lett. **105**, 147601 (2010)
- [6] M. Schenk, M. Krüger und P. Hommelhoff, Phys. Rev. Lett. **105**, 257601 (2010)
- [7] M. Krüger, M. Schenk und P. Hommelhoff, Nature **475**, 78 (2011)
- [8] G. Herink, D. R. Solli, M. Gulde und C. Ropers, Nature **483**, 190 (2012)
- [9] M. I. Stockman, M. F. Kling, U. Kleineberg und F. Krausz, Nature Photonics **1**, 539 (2007)
- [10] L. Wimmer et al., arXiv:1307.2581 (2013)
- [11] S. Kim et al., Nature **453**, 757 (2008)
- [12] I. Y. Park et al., Nature Photonics **5**, 677 (2011)
- [13] M. Sivis, M. Duwe, B. Abel und C. Ropers, Nature **485**, E1 (2012)
- [14] M. Sivis, M. Duwe, B. Abel und C. Ropers, Nature Physics **9**, 304 (2013)
- [15] A. H. Zewail, Science **328**, 187 (2010)

DER AUTOR

Claus Ropers studierte Physik in Göttingen und Berkeley. Er promovierte am Max-Born-Institut Berlin. Seine Dissertation (Humboldt-Universität Berlin, 2007) wurde mit dem Carl-Ramsauer-Preis der Physikalischen Gesellschaft zu Berlin ausgezeichnet. Seit 2008 ist er zurück an der Universität Göttingen, zunächst auf einer Junior-, inzwischen auf einer Universitätsprofessur. Er erforscht verschiedene Aspekte der Ultrakurzzeitphysik und nichtlinearen Photonik und unterhält als Gastwissenschaftler eine enge Bindung zur University of California in Los Angeles. Seine Freizeit verbringt er mit seiner Frau und seinen beiden Töchtern oder auch mit Freunden auf dem Rennrad.

