

光学共振增强的表面铯激活银纳米结构光阴极

彭新村 王智栋 邓文娟 朱志甫 邹继军 张益军

Optical resonance enhanced Cs activated nano-structured Ag photocathode

Peng Xin-Cun Wang Zhi-Dong Deng Wen-Juan Zhu Zhi-Fu Zou Ji-Jun Zhang Yi-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 068501 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20191420

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191420>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

反射式变掺杂负电子亲和势GaN光电阴极量子效率研究

Quantum efficiency for reflection-mode varied doping negative-electron-affinity GaN photocathode

物理学报. 2017, 66(6): 067903 <https://doi.org/10.7498/aps.66.067903>

CsI光阴极在10100 keV X射线能区的响应灵敏度计算

Calculation of CsI photocathode spectral response in 10–100 keV X-ray energy region

物理学报. 2018, 67(8): 085203 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180029>

利用Ag@SiO₂纳米粒子等离子体共振增强发光二极管辐射功率的数值研究

Numerical research of emission properties of localized surface plasmon resonance enhanced light-emitting diodes based on Ag@SiO₂ nanoparticles

物理学报. 2017, 66(23): 237801 <https://doi.org/10.7498/aps.66.237801>

银纳米颗粒阵列的表面增强拉曼散射效应研究

Surface-enhanced Raman scattering effect of silver nanoparticles array

物理学报. 2018, 67(19): 197302 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180650>

铝基银纳米阵列制备及其紫外-可见-近红外光吸收特性

Fabrication and ultraviolet-visible-near infrared absorption properties of silver nano arrays based on aluminum

物理学报. 2020, 69(6): 065201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191522>

光学共振增强的表面铯激活银纳米结构光阴极*

彭新村¹⁾²⁾ 王智栋¹⁾ 邓文娟²⁾ 朱志甫²⁾ 邹继军^{1)†} 张益军³⁾

1) (东华理工大学, 江西省新能源工艺及装备工程技术中心, 南昌 330013)

2) (东华理工大学, 教育部核技术应用工程研究中心, 南昌 330013)

3) (南京理工大学电子工程与光电技术学院, 南京 210094)

(2019年9月18日收到; 2019年12月6日收到修改稿)

金属光阴极因其超短脉冲发射和运行寿命长的特性从而具有重要应用价值, 但是较高的功函数和较强的电子散射使其需要采用高能量紫外光子激发且光电发射量子效率极低. 本文利用 Mie 散射共振效应增强银纳米颗粒中的局域光学态密度, 提升光吸收率和电子的输运效率, 并利用激活层降低银的功函数, 从而增强光阴极在可见光区的量子效率. 采用时域有限差分方法分析银纳米球阵列的光学共振特性, 采用磁控溅射和退火工艺在银/氧化锡铜复合衬底上制备银纳米球, 紧接着在其表面沉积制备铯激活层, 最后在高真空腔体中测试光电发射量子效率. 实验结果表明平均粒径 150 nm 的银纳米球光阴极在 425 nm 波长的量子效率超过 0.35%, 为相同激活条件下银薄膜光阴极的 12 倍, 峰值波长与理论计算的 Mie 共振波长相符合.

关键词: 光学共振, 银纳米球, 光阴极

PACS: 85.60.Ha, 29.25.Bx, 78.67.Bf

DOI: 10.7498/aps.69.20191420

1 引言

新一代先进光源需要兆赫兹重复频率以及阿秒量级时间分辨率的超高亮度电子束. GaAs 等半导体光阴极在可见光波段具有超过 20% 的光电发射量子效率 (quantum efficiency, QE)^[1,2], 但受电子输运时间限制, 光电响应时间限制在皮秒量级^[3], 且性能易受外界影响, 在超高真空条件下持续运行寿命仅数小时^[4]. 金属光阴极因其表面吸收和发射的特性可以实现飞秒量级超短脉冲发射^[5,6], 运行寿命可超过 1 个月^[7,8], 在高重复频率射频电子枪中的应用受到广泛关注^[9].

金属自由电子吸收能量大于功函数的光子跃迁至真空能级实现光电发射, 常用金属的功函数超过 4 eV, 需要波长小于 300 nm 的紫外光激发^[10].

金属表面光反射率高, 且较强的电子-电子散射作用严重影响电子输运效率, 导致 QE 极低 (一般为 10^{-5} 量级^[11]). 上述问题使得高亮度电子束的输出需要高功率密度和高光子能量的紫外激光激发, 技术难度较大且成本高昂, 当前尚无法实现峰值电流达 1 mA 的金属薄膜光阴极电子源, 严重限制其在实际电子加速器中的应用^[12]. 研究人员长期致力于开发在长波段具有较高 QE 值的金属光阴极. 纳米结构金属激发的表面等离子体共振^[13]、Mie 散射共振^[14]等效应可以有效调控光的传输特性, 通过优化结构可以增强局域光学态密度 (local density of optical state, LDOS) 和非线性光学效应等, 从而改善光电发射性能^[15,16]. Li 等^[17], Polyakov 等^[18,19]以及 Baryshev 等^[20]利用纳米结构的表面等离子体共振效应增强金属光阴极在可见光区的非线性多光子吸收, 已报道铜纳米孔^[17]和金纳米槽^[18]阵

* 国家自然科学基金 (批准号: 61204071, 11875012, 61661002) 和江西省新能源工艺及装备工程技术研究中心开放基金 (批准号: JXNE2018-05) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jzou@ecit.cn

列光阴极在 800 nm 波长处的 QE 值分别为表面平坦材料的 100 倍和 10^6 倍. 此外, Cs/O^[21,22], MgO^[23,24], CsBr^[25], KBr^[25] 等多种激活材料被用于降低金属表面的电子功函数, 并结合光学共振效应大幅提升了金属光阴极在可见光区的 QE 值. Nolte 等^[21] 利用 Cs/O 激活层降低银 (Ag) 的功函数, 并利用 Ag 纳米颗粒激发局域等离子体效应大幅增强了局域光场的强度和光吸收率, 在 400—500 nm 可见光波段的光电发射 QE 达 0.4%, 为同等激活条件下表面平坦的 Ag 薄膜光阴极的 10 倍以上.

利用纳米结构的共振光学效应增强光吸收, 并利用激活层降低功函数, 是提升金属光阴极在长波段 QE 值的有效手段. 目前, 相关研究集中在表面等离子体共振效应的影响, Mie 散射共振在金属光阴极中的应用尚未见报道, 在纳米结构光阴极的共振光学性质及结构设计方面缺乏理论分析, 相关制备工艺以及激活材料方面也有待进一步探索. 鉴于

此, 本文采用时域有限差分 (finite different time domain, FDTD) 方法对 Ag 纳米颗粒的 Mie 散射光学共振特性进行理论仿真^[26] 并设计材料结构, 采用磁控溅射和退火工艺在氧化锡铟 (indium tin oxide, ITO) 玻璃表面制备 Ag 纳米球光阴极, 并利用铯 (Cs) 激活层降低表面电子功函数, 在可见光区提升光电发射的 QE 值.

2 实验方法

2.1 器件结构与仿真方法

图 1(a) 给出了金属光阴极的 Spicer 三步光电发射物理过程^[10,27], 其中 E_{FM} , E_{VAC} , W 分别为金属的费米能级、真空能级和金属的功函数; E'_{VAC} 和 W' 分别为综合考虑镜像电荷和激活层作用后金属表面的有效真空能级和有效功函数值. 结合图 1(a), Spicer 三步光电发射物理过程包括电子吸

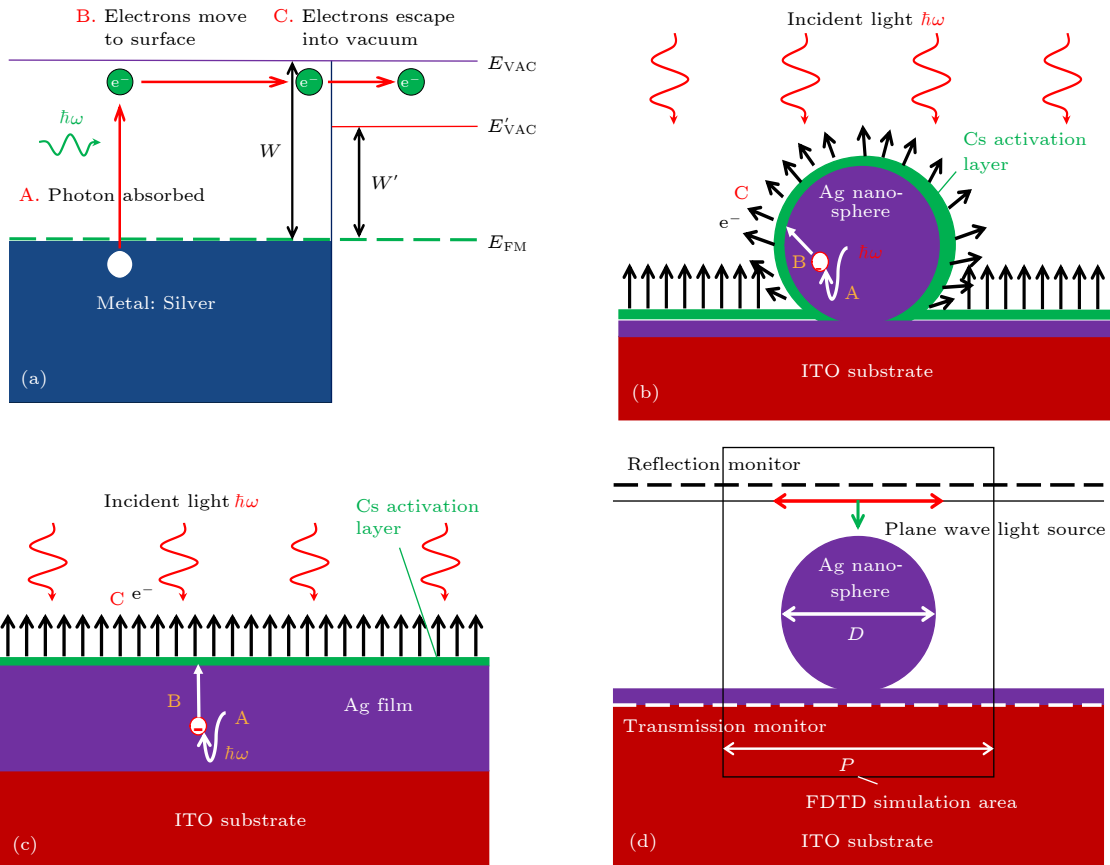


图 1 光学共振增强 Ag 纳米结构光阴极 (a) Spicer 三步光电发射物理过程; (b) Ag 纳米球结构光阴极; (c) Ag 薄膜光阴极; (d) ITO 衬底上 Ag 纳米球的 FDTD 光学仿真设置

Fig. 1. Optical resonance enhanced Ag nano-structured photocathode: (a) Spicer's three-step model of photoemission; (b) illustration of the Ag nano-structured photocathode; (c) illustration of the Ag film photocathode; (d) cross-section of the FDTD setup used for simulating the optical properties of the Ag nanoparticles on ITO substrate.

收能量大于 W 的光子激发至高能态 (过程 A), 然后扩散输运至表面并维持在高能态 (过程 B), 最后跃过表面势垒实现逃逸 (过程 C), 因此光电发射的 QE 由光吸收率、光电子输运效率和表面逃逸概率综合决定.

图 1(b) 为 Ag 纳米结构光阴极的结构与光电发射过程示意图, Ag 纳米球为光电发射有源区, 表面 Cs 激活层用于降低电子功函数进而使其在长波段可见光区实现光电发射. 图 1(c) 为普通 Ag 薄膜光阴极的结构. 比较图 1(b) 和图 1(c), 可以看出纳米结构在光电发射方面的优势. 首先, 纳米颗粒的 Mie 光学共振效应可以大幅度降低表面光反射, 增强 LDOS, 将入射光有效限制在纳米颗粒中进行吸收. 这不仅可以增强光吸收率, 还可以有效改善光电子的输运效率, 从而提升光阴极的 QE. 其次, 相比于平坦表面的薄膜结构, 纳米结构的有效光电发射表面积更大, 从而有望获得更高的发射效率.

实际制备的 Ag 纳米颗粒近似为圆球形状, 本文将以圆球状纳米颗粒的理论结果为参考进行分析. 在实际工艺中, 纳米颗粒与 ITO 衬底之间会残留一层约 200 nm 厚的 Ag 薄膜 (图 1(b) 和图 1(d)), 在理论分析中需要考虑其对器件光电性能的影响. 纳米颗粒的光散射效率 (Q_{sca})、吸收效率 (Q_{abs}) 和总消光效率 (Q_{ext}) 可用于分析 Mie 散射共振特性, 定义为^[28,29]

$$Q_{\text{sca,abs,ext}} = \frac{\sigma_{\text{sca,abs,ext}}}{\sigma_{\text{phy}}} = \frac{P_{\text{sca,abs,ext}}/I}{\pi R^2} \quad (1)$$

其中 $\sigma_{\text{sca,abs,ext}}$ 为单个纳米球的散射、吸收和总消光截面, 为单个纳米球的散射、吸收和总消光功率 ($P_{\text{sca,abs,ext}}$) 与入射光强 (I) 的比值; $\sigma_{\text{phy}} = \pi R^2$ 为单个纳米球垂直于入射光方向的投影物理截面, R 为纳米球的半径. (1) 式中的物理参数均可采用 FDTD 方法进行仿真计算^[26]. 图 1(d) 为 FDTD 仿真设置, Ag 纳米球以二维正方形周期排列, 仿真区域为以纳米球为中心的正方形周期重复单元, 结构参数为纳米球的直径 (D) 和相邻纳米球的间距 (P). 仿真所采用的网格精度为 2 nm. 由于表面 Cs 激活层仅为几个原子层厚度^[1], 其对光学特性的影响可以忽略. 在纳米球的表面和背面分别设置反射率和透过率监视器, 可以获得入射光的表面反射率、透过率和吸收率.

2.2 制备工艺与性能测试

图 2(a) 为 Ag 纳米球光阴极的制备工艺流程. 首先采用磁控溅射方法在 ITO 表面制备 Ag 薄膜, 溅射条件为: 背底真空度优于 10^{-6} Torr (1 Torr \approx 133.322 Pa), 溅射工作气体为 5×10^{-4} Torr 的 Ar 气, 溅射离子能量为 600 eV, 电流为 0.16 A, 溅射时间在 2—12 s 之间变化以调节纳米球的尺寸. 将所溅射的 Ag 薄膜在 Ar 气氛下退火约 20 min, 退火温度 300 °C, 使得 ITO 表面的 Ag 薄膜自组装为 Ag 纳米球颗粒. 图 2(b) 和图 2(c) 分别为退火前的 Ag 薄膜和退火后的 Ag 纳米球的扫描电子显微镜 (scanning electron microscopy, SEM) 照片. 将所制备的 Ag 纳米球光阴极样品安装在背底真空度优于 10^{-11} Torr 的腔体中加热至 400 °C 进行表面热清洗, 以去除表面氧化层. 然后将温度降低至室温, 采用 Cs 源进行激活. 激活工艺过程为: 将放置于电阻丝上的高纯 Cs 源 (购于 SAES 公司) 连接至电流源正负极并安装在真空激活腔体中, 电阻丝中有电流流过时可以加热 Cs 源从而释放 Cs 原子并沉积在 Ag 纳米球表面进行激活, Cs 原子的释放速率可通过电流大小进行控制, 在整个激活过程中将铯原子的分压维持在 $(2-3) \times 10^{-14}$ Torr 范围内, 并采用波长 $\lambda = 532$ nm 的激光持续照射光阴极表面以激发可供监测的光电流. 图 2(c) 为实际 Ag 纳米球表面 Cs 激活过程中光电流随时间的变化, 可以看到光电流随时间持续上升, 在约 1 h 时光电流达到最大, 说明已获得最佳激活效果, 随后光电流开始下降.

Ag 光阴极在 400—700 nm 波长范围内的光电发射 QE 谱直接在高真空激活腔体中进行测试, 采用超连续白光激光源和波长可调谐滤波器输出 400—850 nm 波长连续可调的激光作为光阴极的光电发射激发光源. 采用紫外-可见分光光度计测试 Ag 薄膜和纳米球颗粒的光吸收谱, 并结合 FDTD 仿真结果分析纳米球颗粒的共振光吸收增强特性.

3 结果及讨论

Mie 散射共振与 Ag 纳米球及其周围媒介的尺寸与光学性质密切相关. 图 3(a) 为 FDTD 仿真得到的真空中和 Ag/ITO 薄膜复合衬底上直径 $D =$

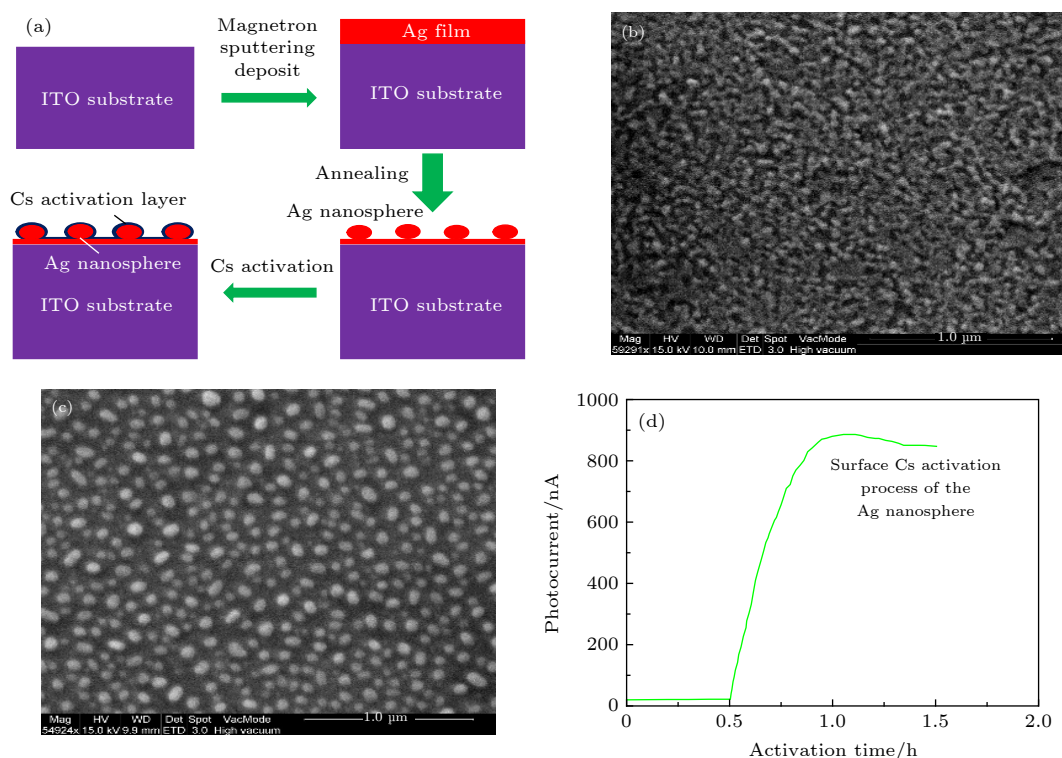


图 2 Ag 纳米球光阴极的制备及 Cs 激活工艺 (a) Ag 纳米球光阴极的制备工艺流程; (b) 退火前 Ag 薄膜的 SEM 照片; (c) 退火后 Ag 纳米球的 SEM 照片; (d) Ag 纳米球表面 Cs 激活过程中光电流的演化过程

Fig. 2. Fabrication and activation process of the Ag nanosphere photocathode: (a) Schematics of the fabrication process for Ag nanosphere photocathode; (b) SEM image of the Ag film; (c) SEM image of the Ag nanosphere; (d) surface Cs activation process of the Ag nanosphere.

120 nm 的 Ag 纳米球在 300—900 nm 波长范围内的 Q_{sca} , Q_{abs} 和 Q_{ext} 谱. 真空中的 Ag 纳米球在 439 nm 处出现了 Q_{ext} 共振峰, 与已报道的结果一致^[29,30]. 衬底上同样尺寸的 Ag 纳米球在 505 nm 处出现了更强的 Q_{ext} 共振峰, 表明衬底对共振特性的影响较大. 图 3(b) 与图 3(c) 分别给出了真空中和衬底上纳米球中心截面上的归一化磁场强度及磁场线分布, 环状磁场线对应电偶极子 (electric dipole, ED) 共振. 衬底上的 Ag 纳米球在 400—450 nm 波段的另外两个消光峰也主要来源于 ED 共振. 两种纳米球在 350 nm 波长附近均出现了消光峰, 图 3(d) 为其所对应的归一化磁场强度及磁场线分布, 纳米球内部出现两处环状磁场线, 表明其为电四极子 (electric quadrupole, EQ) 共振. 针对 Ag 纳米球在光阴极器件中的应用, 主要关注 Mie 散射共振对光吸收效率 Q_{abs} 的增强作用. 由图 3(a) 可见, 在 ED 共振波长附近, 衬底上的纳米球具有远高于真空中纳米球的 Q_{abs} 共振峰强度和峰宽, Q_{abs} 值大于 1 说明纳米球中的光吸收超过

了投影至其物理截面上的光强. 这一结果与半导体纳米颗粒的 Mie 散射共振特性相似, 分析其原因主要是衬底的引入提供了额外的消光渠道, 提升了光场的耦合与吸收效率并使共振峰展宽^[31,32].

针对光阴极的应用需求, 重点分析尺寸对 Ag/ITO 衬底上二维正方形周期排列的 Ag 纳米球阵列光吸收率 (η_a) 的影响. 图 4(a) 为 FDTD 仿真得到的 Ag 纳米球阵列的光吸收率随直径 D 和波长 λ 的变化, 相邻纳米球的间距 P 设定为 400 nm. 由图 4(a) 可见, 在 300—600 nm 波长范围内出现了明显的吸收峰, 波长较长的吸收峰涵盖 D 值为 100—350 nm 的整个区间, 主要由 ED 共振产生, 随着 D 的增加, 在较短波长处出现了新吸收峰, 主要由 EQ 共振产生. 共振峰波长随 D 增加而增加, 与 Mie 散射理论相符合^[14]. 图 4(b) 为 Ag 纳米球的光吸收率随 P 和波长 λ 的变化, D 设定为 120 nm. 由图 4(b) 可见, Ag 纳米球的 ED 共振吸收峰波长随 P 变化较小, 而峰强受 P 影响较大. 间距 P 较小时, 纳米球之间的相互作用较强, 共振峰的程度

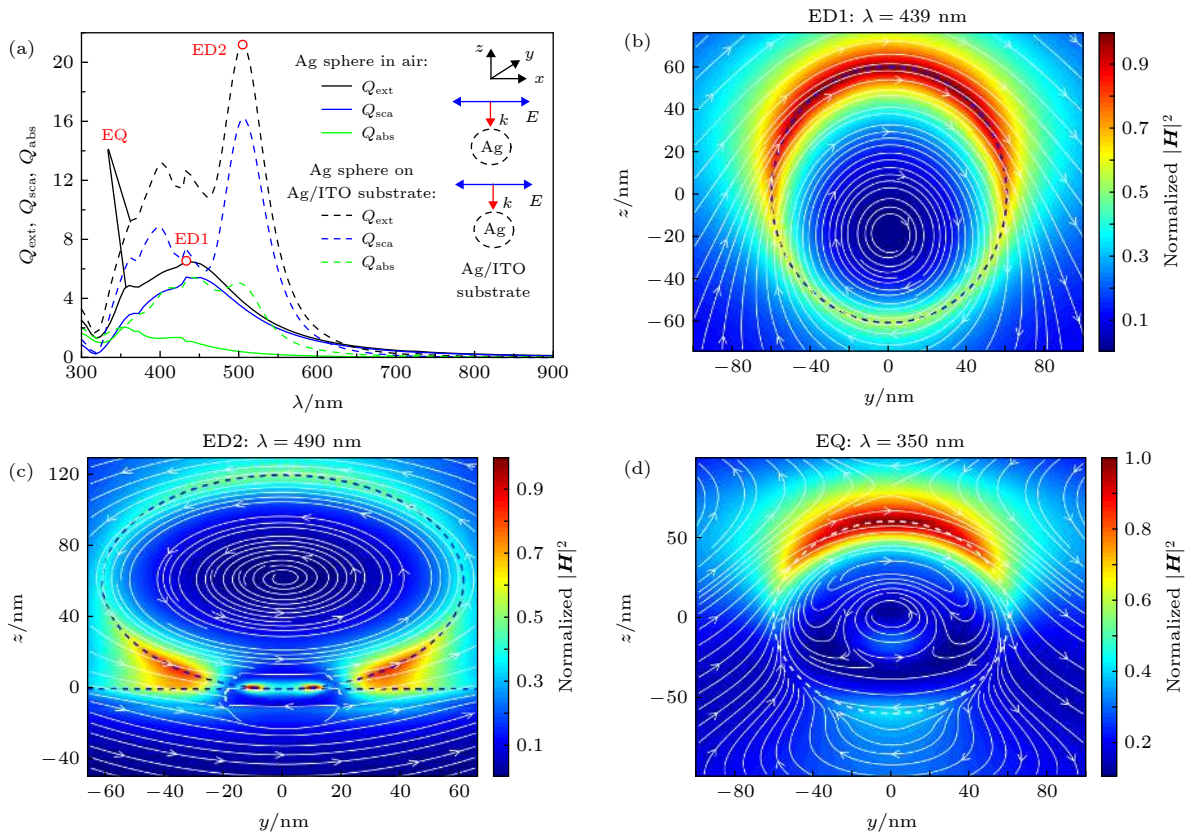


图3 Ag纳米球的Mie共振特性 (a)真空中和Ag/ITO衬底上直径 $D = 120$ nm的Ag纳米球的 Q_{sca} , Q_{abs} 和 Q_{ext} 谱; (b), (c)分别为真空中和Ag/ITO衬底上Ag纳米球中心截面在电偶极子共振波长处(分别为439和505 nm)的归一化磁场强度和磁场线分布; (d) Ag纳米球中心截面在电四极子共振波长处(350 nm)的归一化磁场强度和磁场线分布

Fig. 3. Mie resonance characteristics of Ag nanospheres: (a) Light scattering, absorption and extinction efficiency ($Q_{sca, abs, ext}$) spectra of the Ag nanosphere ($D = 120$ nm) in air and on substrates; (b) and (c) are the normalized magnetic field intensity ($|\mathbf{H}|^2$, color) and lines (white lines) in vertical crosscuts through the center of the Ag nanosphere in air and on Ag/ITO substrate with the electric dipole resonance wavelength of 439 and 505 nm, respectively; (d) the normalized magnetic field intensity ($|\mathbf{H}|^2$, color) and lines (white lines) in vertical crosscuts through the center of the Ag nanosphere with the electric quadrupole resonance wavelength of 350 nm.

较低并且峰宽较大,随着 P 增大,共振峰逐渐增强并且变窄.继续增大 P 至450 nm以上时,纳米球表面填充率过低,使得光场在纳米球中的耦合效率降低,从而使峰强减弱.此外,降低表面填充率也会降低表面光电发射的有效面积.

上述分析结果可为Ag纳米球光阴极的结构设计提供理论依据.纳米球直径主要影响共振吸收峰的共振模式和波长,因此针对不同波长的光电发射应用可以通过选择合适的直径实现所需共振模式增强的光电发射.图4(a)的结果表明在相同共振波长下,电偶极子共振模式所对应的纳米球直径远小于电四极子,因此前者具有更高的聚光能力,应用于光电发射可以实现更高的光电转换效率.间距的选择则需要平衡共振吸收峰强度与表面光电发射的有效面积两方面的因素.本文采用磁控溅射

结合退火工艺制备了Ag纳米球,图5(a)和图5(b)分别给出了ITO衬底上Ag薄膜与纳米球颗粒的光吸收谱实验测试与理论仿真结果.实验结果表明,在400—600 nm波段,Ag薄膜的光吸收率低于5%,Mie共振将Ag纳米球的光吸收率增加至30%以上,并且共振峰的波长随纳米球直径增大而增大,与理论结果相符合.比较图5(a)和图5(b),理论仿真的共振峰强度更高,峰宽更小,短波处的EQ共振峰和长波处的ED共振峰清晰可辨.分析原因,实验制备的Ag纳米球颗粒并非整齐排列,直径与间距也非完全一致(见图2(c)),图5(a)中所给出的纳米球直径为颗粒的平均粒径,这些非理想因素降低了共振吸收峰的强度,并且使共振峰展宽,导致EQ和ED共振峰交叠形成一个较宽的吸收峰.

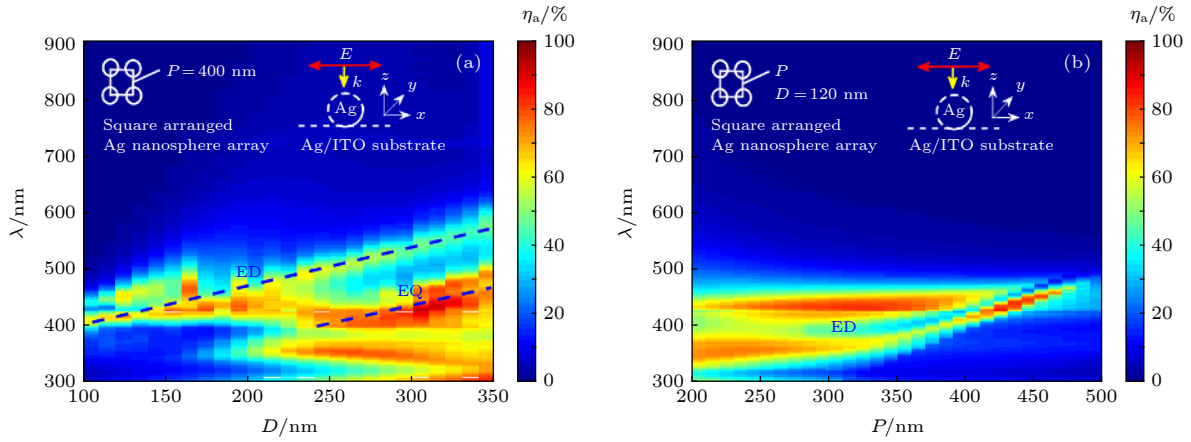


图 4 Ag/ITO 衬底上二维正方形排列的 Ag 纳米球阵列光吸收率 η_a (a) $P = 400$ nm 时, η_a 随纳米球直径 D 与波长的关系; (b) $D = 120$ nm 时, η_a 随纳米球间距 P 与波长的关系

Fig. 4. η_a spectra of the square arranged Ag nanosphere array on Ag/ITO substrate: (a) Dependence of η_a spectra upon D when $P = 400$ nm; (b) dependence of η_a spectra upon P when $D = 120$ nm.

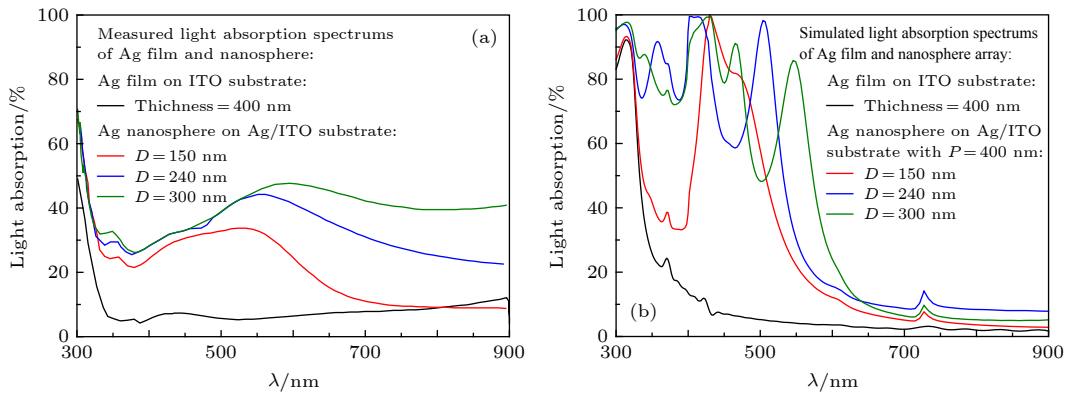


图 5 Ag 纳米球阵列与薄膜的光吸收谱 (a) 测试结果; (b) 仿真结果

Fig. 5. Light absorption spectrums of the Ag nanosphere array and Ag film: (a) Measured results. (b) simulated results.

所制备的 Ag 纳米球和薄膜光阴极的表面在高真空腔体中采用 Cs 进行激活并测试光电发射量子效率, 图 6(a) 为测试结果. 由图 6(a) 可见, 平均粒径 150 nm 的 Ag 纳米球光阴极在约 425 nm 波长处出现了光电发射 QE 峰, 与 Mie 共振吸收峰位波长一致 (见图 6(b)), 峰值 QE 达 0.36%, 为同样波长处薄膜阴极 (425 nm 处的 QE 约 0.03%) 的 12 倍. Ag 的电子功函数约为 4.26 eV^[10], 对应光电发射的阈值光波长约 290 nm, 而由图 6(a) 可见 Ag 光阴极在 600 nm 处仍存在光电发射响应, 表明 Cs 表面激活层可以有效降低表面电子的功函数. 这一结果与表面激活的半导体光阴极类似, 研究认为引入 Cs 等激活材料在阴极表面形成电偶极层可以降低电子功函数, 电偶极层一般仅为几个原子层厚度, 因此电子可以借助隧道效应穿越该势垒层而逸出^[1,4].

图 6(a) 中纳米球光阴极的共振增强 QE 峰的峰宽远小于图 5(a) 中同样尺寸纳米球的共振吸收峰, 在波长大于 425 nm 的长波段, QE 随波长增加而迅速降低. 由于 Cs 激活层降低表面电子功函数的程度是有限的, 当激发光子波长增加 (能量降低) 时, 激发电子的能态位置降低, 其逸出所需要克服的表面势垒高度和宽度也会增加, 因此逸出概率降低从而导致 QE 下降. 此外, 由图 6(b) 可见, 纳米球的共振吸收峰涵盖约 425—500 nm 波段, 短波部分的光吸收主要发生在纳米球内部, 长波部分则有更高比例的光被衬底吸收, 由于小尺寸纳米球内部光激发的高能态电子更容易扩散至表面实现发射, 因此具有高于衬底的光电子输运效率, 这是导致长波区 QE 降低的另一因素. 比较图 5(a) 与图 6(a), 在 425 nm 波长处, 直径 150 nm 的 Ag 纳米球光吸收率约为薄膜的 6 倍, 而前者 QE 则为

后者的 12 倍, 由于两种样品的表面特性相似且激活测试环境相同 (即表面电子的逃逸概率相差不大), 因此纳米球更高的光电子输运效率也是增强 QE 的重要因素.

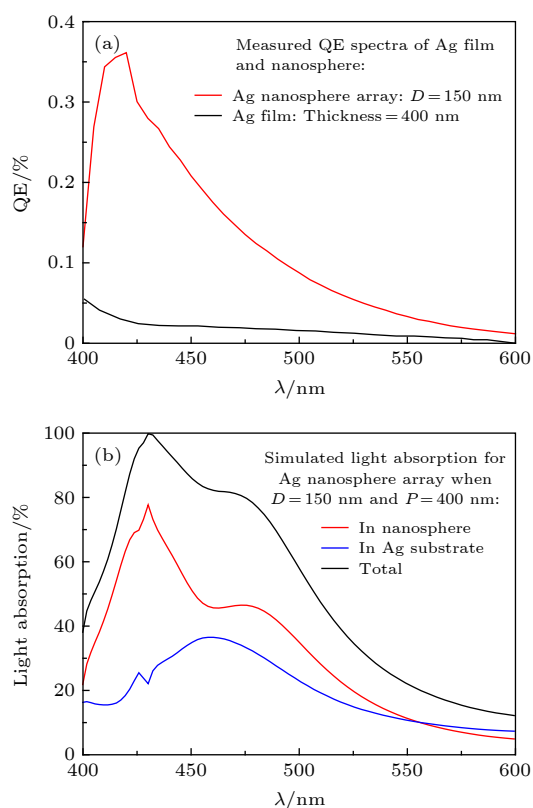


图 6 (a) 实验测得的 Ag 纳米球阵列与薄膜光阴极光电发射量子效率; (b) 理论计算的 Ag 纳米球阵列结构光阴极的光吸收谱

Fig. 6. (a) Measured photoemission quantum efficiency of the Ag nanosphere array and film photocathode; (b) calculated light absorption spectra of the Ag nanosphere array photocathode.

4 结 论

本文验证了 Mie 散射共振效应可以有效提升 Ag 纳米球光阴极的 QE, 并采用表面铯激活层有效降低了 Ag 的表面电子功函数, 从而使其在 400—600 nm 波段的可见光区实现光电发射. 所制备的直径 150 nm 的 Ag 纳米球在约 425 nm 的电偶极子共振波长处 QE 达 0.36%, 为同等表面激活条件下薄膜的 12 倍, 相比于表面无激活层的 Ag 光阴极, QE 提升了两个数量级. 理论及测试分析表明 QE 的增强主要是因为 Mie 散射共振大幅提升了光吸收率, 并且纳米球因其较小的尺寸而具有更高的电子输运效率. 实验结果与 Nolle 等^[21]报道的

利用表面等离子体共振效应增强的直径低于 50 nm 的 Ag 纳米球光阴极在 400—500 nm 波段达 0.4% 的 QE 值相差不大. 在波长大于 400 nm 的可见光区, 表面等离子体共振所需要的 Ag 纳米球直径远小于 Mie 散射共振, 因此后者的制备工艺难度相对较低. 此外, Mie 散射共振因其寄生吸收效应弱、共振特性受纳米颗粒形状影响低和可以在高折射率介质材料中激发等优势而受到更广泛的关注. 本文采用退火工艺制备的自组装 Ag 纳米球的粒径及分布难以精确控制, 均匀性较差, 使得共振光吸收峰展宽且强度降低. 此外, Ag 表面极易氧化, 影响光阴极的激活效果, 而表面热清洗温度太高可能会对纳米结构材料造成破坏. 未来可以采用纳米压印、电子束光刻等技术制备尺寸及分布精确可控 Ag 纳米结构, 对入射光场在金属纳米结构中的分布进行精确控制, 还需要探索等离子体清洗、化学清洗等表面清洗工艺, 从而进一步提升光阴极的光电发射性能. Mie 散射共振还可以增强多光子吸收等非线性光学效应, 可以拓展金属光电发射的响应波段. 本文结果对基于纳米光子结构的金属光阴极超高亮度电子源的发展与应用具有重要的实际应用价值.

感谢美国托马斯·杰斐逊国家加速器实验室张树葵, Matt Poelker, Marcy Stutzman 在光阴极激活与量子效率测试方面给予的帮助和在文章撰写方面的讨论.

参考文献

- [1] Zhang Y, Qian y, Feng C, Shi F, Cheng H, Zou J, Zhang J, Zhang X 2017 *Opt. Mater. Express* **7** 3456
- [2] Deng W J, Peng X C, Zou J J, Jiang S T, Guo D, Zhang Y J, Chang B K 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 167902 (in Chinese) [邓文娟, 彭新村, 邹继军, 江少涛, 郭栋, 张益军, 常本康 2014 *物理学报* **63** 167902]
- [3] Karkare S, Boulet L, Cultrera L, Dunham B, Liu X, Schaff W, Bazarov I 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 097601
- [4] Hernandez G C, Poelker M, Hansknecht J 2016 *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.* **23** 418
- [5] Xiang R, Teichert J 2015 *Phys. Procedia* **77** 58
- [6] Pasmans P L E M, van Vugt D C, van Lieshout J P, Brussaard G J H, Luiten O J 2016 *Phys. Rev. Accel. Beams* **19** 103403
- [7] Musumeci P, Moody J T, England R J, Rosenzweig J B, Tran T 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 244801
- [8] Xiang R, Arnold A, Michel P, Murcek P, Teichert J, Lu P, Vennekate H 2016 *Proceedings of the 7th International Particle Accelerator Conference Busan, Korea, May 8–13, 2016* p3928
- [9] Barday R, Burrill A, Jankowiak A, Kamps T, Knobloch J,

- Kugeler O, Matveenko A, Neumann A, Schmeißer M, Völker J, Kneisel P, Nietubyc R, Schubert S, Smedley J, Sekutowicz J, Will I 2013 *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **16** 123402
- [10] Camino B, Noakes T C Q, Surman M, Seddon E A, Harrison N M 2016 *Comput. Mater. Sci.* **122** 331
- [11] Lorusso A 2013 *Appl. Phys. A* **110** 869
- [12] Dowell D H, Bazarov I, Dunham B, Harkay K, Hernandez-Garcia C, Legg R, Padmore H, Rao T, Smedley J, Wan W 2010 *Nucl. Instrum. Methods A* **622** 685
- [13] Sheldon M T, Groep J, Brown A M, Polman A, Atwater H A 2014 *Science* **346** 828
- [14] Kuznetsov A I, Miroshnichenko A E, Brongersma M L, Kivshar Y S, Luk'yanchuk B 2016 *Science* **354** aag2472
- [15] Vilayurganapathy S, Nandasiri M I, Joly A G, El-Khoury P Z, Varga T, Coffey G, Schwenzer B, Pandey A, Kayani A, Hess W P, Thevuthasan S 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 161112
- [16] An C, Zhu R, Xu J, Liu Y, Hu X, Zhang J, Yu D 2018 *AIP Adv.* **8** 055225
- [17] Li R K, To H, Andonian G, Feng J, Polyakov A, Scoby C M, Thompson K, Wan W, Padmore H A, Musumeci P 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 074801
- [18] Polyakov A, Senft C, Thompson K F, Feng J, Cabrini S, Schuck P J, Padmore H A, Peppernick S J, Hess W P 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 076802
- [19] Polyakov A, Cabrini S, Dhuey S, Harteneck B, Schuck P J, Padmore H A 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 203104
- [20] Baryshev S V, Antipov S, Kanareykin A D, Techlabs E, Savina M R, Zinovev A V, Thimsen E 2014 *Proceedings of the 5th International Particle Accelerator Conference Dresden, Germany, June 15–20, 2014* p739
- [21] Nolle E L, Khavin Y B, Schelev M Y 2005 *Proc. of SPIE* **5580** 424
- [22] Nolle E L and Schelev M Y 2004 *Tech. Phys. Lett.* **30** 304
- [23] Droubay T C, Chambers S A, Joly A G, Hess W P, Németh K, Harkay K C, Spentzouris L 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 067601
- [24] König T, Simon G H, Rust H -P, Heyde M 2009 *J. Phys. Chem. C* **113** 11301
- [25] He W, Vilayurganapathy S, Joly A G, Droubay T C, Chambers S A 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 071604
- [26] Ge X, Zou J, Deng W, Peng X, Wang W, Jiang S, Ding X, Chen Z, Zhang Y, Chang B 2015 *Mater. Res. Express* **2** 095015
- [27] Spicer W E 1977 *Appl. Phys.* **12** 115
- [28] Evlyukhin A B, Reinhardt C, Seidel A, Luk'yanchuk B S, Chichkov B N 2010 *Phys. Rev. B* **82** 045404
- [29] Jiang Z Y, Wang Z Y, Wang J J, Zhang R J, Zheng Y X, Chen L Y, Wang S Y 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 207802 (in Chinese) [江智宇, 王子仪, 王金山, 张荣君, 郑玉祥, 陈良尧, 王松有 2016 *物理学报* **65** 207802]
- [30] Huang Y, Ringe E, Hou M, Ma L, Zhang Z 2015 *AIP Adv.* **5** 107221
- [31] Groep J, Center A P 2013 *Opt. Express* **21** 26285
- [32] Spinelli P, Verschuuren M A, Polman A 2012 *Nat. Commun.* **3** 692

Optical resonance enhanced Cs activated nano-structured Ag photocathode*

Peng Xin-Cun¹⁾²⁾ Wang Zhi-Dong¹⁾ Deng Wen-Juan²⁾
Zhu Zhi-Fu²⁾ Zou Ji-Jun^{1)†} Zhang Yi-Jun³⁾

1) (*Engineering Research Center of Nuclear Technology Application, Ministry of Education, East China Institute of Technology, Nanchang 330013, China*)

2) (*Engineering Research Center of New Energy Technology and Equipment of Jiangxi Province, East China Institute of Technology, Nanchang 330013, China*)

3) (*School of Electronic and Optical Engineering, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China*)

(Received 18 September 2019; revised manuscript received 6 December 2019)

Abstract

Metallic photocathodes have drawn attention due to their outstanding performances of ultrafast photoelectric response and long operational lifetime. However, due to their high work function and the large number of scattering events, metallic photocathodes typically are driven by ultraviolet laser pulses and characterized by low intrinsic quantum efficiency (QE). In this work, a new type of Mie-type silver (Ag) nano-sphere resonant structure fabricated on an Ag/ITO composite substrate is used to enhance the photocathode QE, where Mie scattering resonance is used to enhance the local density of optical state and then to improve the light absorption and electron transporting efficiency in Ag nano-spheres. The cesium (Cs) activation layer is also used to lower the electron work function and then to excite photoemission in the visible waveband for Ag photocathode. The optical characteristics of Ag nano-sphere arrays are analyzed by using finite difference time domain method. For the investigated Ag nano-sphere array, theoretical results show that Mie-type electric dipole resonance modes can be obtained over the 400–600 nm waveband by adjusting the sphere diameter, and the large resonance-enhanced absorption can be achieved in nanospheres at the resonance wavelength. The Ag nano-spheres are fabricated on the Ag/ITO substrate by magnetron sputtering and annealing process, then the Cs activation layer is deposited on surface, and finally QE is measured in an ultra-high vacuum test apparatus. Experimental results show that over 0.35% of QE is obtained for Ag nano-sphere particle (with a diameter of 150 nm) at a wavelength of 425 nm, and the wavelength positions of QE maxima are in agreement with Mie resonance for corresponding geometry predicted from the computational model. Given these unique optoelectronic properties, Ag nanophotonic resonance structured photocathodes represent a very promising alternative to photocathodes with flat surfaces that are widely used in many applications today.

Keywords: optical-resonance, Ag-nanospheres, photocathode

PACS: 85.60.Ha, 29.25.Bx, 78.67.Bf

DOI: 10.7498/aps.69.20191420

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61204071, 11875012, 61661002) and the Opening Foundation of Engineering Research Center of New Energy Technology of Jiangxi Province, China (Grant No. JXNE2018-05).

† Corresponding author. E-mail: jjzou@ecit.cn