

УДК 537/533

ИССЛЕДОВАНИЕ СТРУКТУРНОЙ КИНЕТИКИ ВЕЩЕСТВА МЕТОДОМ СВЕРХБЫСТРОЙ ДИФРАКЦИИ ЭЛЕКТРОНОВ

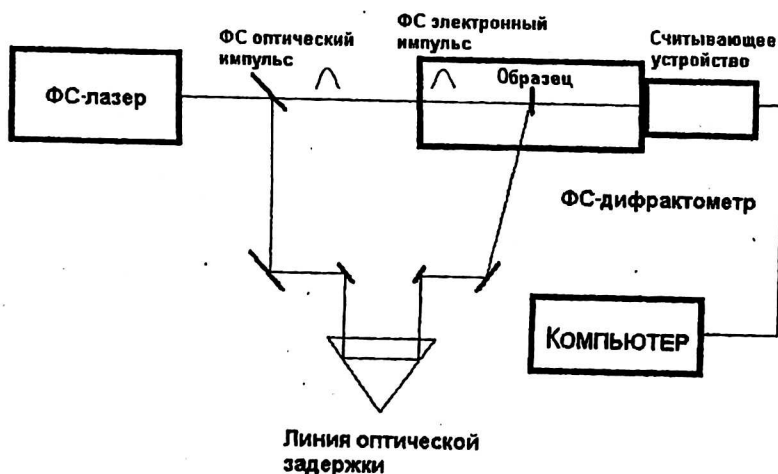
В. Г. Дробот, М. А. Монастырский

Институт общей физики РАН, Москва, Россия

В последнее десятилетие получил развитие метод сверхбыстрой дифракции электронов, являющийся новым и перспективным методом исследования быстротекущих фемтосекундных явлений. С точки зрения математического моделирования основной проблемой здесь являются расчет и обработка дифракционной картины, полученной от пикофемтосекундного электронного импульса, для чего необходимо решить прямую задачу дифракции реального фемтосекундного пучка на твердотельной и газообразной мишени.

Важной задачей современной физики и химии является исследование изменения структуры вещества на пико- и субпикосекундных интервалах времени. В последнее десятилетие развитие получил новый метод сверхбыстрой дифракции электронов, который может применяться для исследования молекулярной структуры твердых тел и газов, фазовых переходов, электронных волновых функций атомов в возбужденных состояниях и т. д. Так как в большинстве случаев характерное время протекания исследуемого процесса мало (пико- и фемтосекунды), важным требованием является обеспечение минимальной длительности электронного импульса.

Несмотря на разнообразие проводимых экспериментов по электронной дифракции, можно указать принципиальную стандартную схему (см. рисунок). Исследуемый образец помещается в камеру дифрактометра. Короткий оптический импульс, полученный от фемтосекундного (ФС) лазера, разделяется на два. Первый импульс подается на фотокатод дифрактометра и используется для формирования фемтосекундного электронного импульса, второй — проходит через оптическую линию задержки и используется для возбуждения образца. На экране наблюдается электронная дифракционная картина. Имеется возможность регулировать время задержки между лазерным импульсом, подаваемым на образец, и электронным пучком, что позволяет получать на экране временные срезы процесса, возбужденного лазерным излучением. Картина на экране считывается специальным устройством и передается в компьютер для дальнейшей обработки.



Принципиальная схема экспериментов по сверхбыстрой дифракции электронов

Одни из первых исследований по пикосекундной электронной дифракции были выполнены Муру и Виллиамсоном в 1982 г. [1], в связи с исследованиями в физике твердого тела и физике полупроводников изменений структуры вещества в пикосекундном временном масштабе под воздействием лазерного излучения. Для генерации пикосекундного электронного импульса использовался электронно-оптический преобразователь, фотокатод которого освещался лазерным импульсом. В качестве исследуемого образца использовалась алюминиевая фольга толщиной 150 ангстрем. Исследование Муру и Виллиамсона показали возможность получения дифракционной картины при использовании пикосекундного электронного импульса. Те же авторы применили метод электронной дифракции для временного разрешения процесса плавления в алюминии под действием лазерного импульса [2]. Оказалось, что при быстром нагревании дальний порядок решетки сохраняется для температур выше точки плавления. Было достигнуто временное разрешение 20 пс, толщина алюминиевой пленки 250 ангстрем.

В первых экспериментах по исследованию возбужденных светом газов, проведенных в 80-х годах в Московском государственном университете [3], временное разрешение составляло милли- и микросекунды. До этого времени эксперименты по дифракции электронов проводились с химически стабильными молекулами, находившимися в основных электронных состояниях. Короткоживущие состояния молекул обычно исследовались спектроскопическими методами в инфракрасной и микроволновой области. В последнее время для изучения физических и химических процессов в газах, возникающих под действием лазерного излучения, применяются методы электронной дифракции, способные давать информацию о молекулярных нестабильных состояниях [4, 5].

Бен-Нан и др. в работе [6] показали, что изменение в распределении электронной плотности атомов вещества может существенно изменить дифракционную картину, получаемую при дифракции рентгеновских лучей и электронов. Прежде всего исследовались основные электронные состояния атомов, хотя дифракционные методы могут быть использованы и для изучения возбужденных состояний атомов. Важно заметить, что небольшие изменения в прямом пространстве могут приводить к существенным изменениям в обратном пространстве, т. е. в дифракционной картине. Также было показано, что в опытах по дифракции на газообразных образцах предпочтительнее использовать дифракцию электронов, а не рентгеновских лучей, так как электроны обладают существенно большим сечением рассеяния по сравнению с фотонами. Для расчета электронных плотностей была использована теория Хартри-Фока без учета спина.

В статьях Эльсаед-Али и др. [7—9] описаны эксперименты по дифракции электронов при отражении от поверхностных слоев металлов. В этих работах установлено, что зависимость структуры поверхностных и внутренних слоев вещества от температуры различны. Начало разупорядочивания поверхностных атомных слоев свинца наблюдается при температуре на 150 К ниже температуры плавления (600,7 К). Свойства неупорядоченного слоя аналогичны свойствам жидкой фазы вещества. Длительность лазерного импульса доходила до 2 пс, порожденного им электронного пучка — менее 5 пс [8]. Было показано, что метод электронной дифракции наилучшим образом подходит для изучения динамики структурных изменений с пико- и даже фемтосекундным временным разрешением, что является достаточным для исследования протекания поверхностных молекулярных реакций.

В течение последнего десятилетия работы по электронной дифракции с временным разрешением активно ведутся в Калифорнийском технологическом институте под руководством профессора Зивейла [11—15]. В результате были проведены уникальные эксперименты по изучению сложных молекулярных систем на пикосекундных и субпикосекундных интервалах [15].

Между группой профессора Зивейла и Отделом фотоэлектроники Института общей физики РАН уже несколько лет ведется сотрудничество в области сверхбыстрой дифракции электронов. В рамках работ в Отделе фотоэлектроники был разработан и изготовлен фемтосекундный дифрактометр для экспериментов по сверхбыстрой диф-

рации электронов [16]. Дифрактометр представляет собой прибор, способный работать как в режиме непосредственно дифрактометра (взаимодействие электронного пучка с мишенью и регистрация дифракционной картины), так и в режиме измерения временного разрешения.

Эксперименты по сверхбыстрой дифракции электронов проводились на алюминиевой фольге толщиной 300 Å, возбуждаемой лазерным импульсом, синхронизированным с пучком электронов. Были проведены два типа экспериментов.

В первом применялись лазерные импульсы длительностью 69 фс на длине волны 669 нм; воздействие излучения на образец повторялось с частотой 1 МГц, число электронов в импульсе составляло около 10^4 , всего использовалось 300 импульсов.

Во втором эксперименте использовались 795 нм-импульсы длительностью 60 фс с частотой 82 МГц. Всего было использовано $4 \cdot 10^4$ импульсов, содержащих $1,5 \cdot 10^3$ электронов. Ускоряющее напряжение составляло 30 кВ. Полученные в обоих экспериментах дифракционные картины хорошо соответствуют известному условию Брэгга. Максимальное временное разрешение составляло 540 фс при скорости развертки $2,7 \cdot 10^{10}$ см/с. Проведенные эксперименты показывают возможность получения дифракционных картин с фемтосекундным временным разрешением.

Заключение

Метод сверхбыстрой дифракции электронов является новым и перспективным методом исследования быстропротекающих процессов. Одной из главных задач является получение электронного импульса минимальной длительности (на данный момент это сотни фемтосекунд). Однако не менее важной задачей являются обработка дифракционного изображения и восстановление по нему свойств объекта, т.е. решение обратной задачи дифракции. Для этого необходимо рассмотреть дифракцию реального короткого электронного импульса. Для получения электронного пучка обычно используются электронно-оптические преобразователи, поэтому свойства электронного пучка выражаются через электронно-оптические характеристики ЭОПа, которые таким образом можно напрямую связать со свойствами дифракционной картины.

Литература

1. Williamson S., Mourou G. and Letzring S. Picosecond electron diffraction // SPIE. V. 348 High Speed Photography. San Diego, 1982.
2. Williamson S., Mourou G. and Li J. C. M. Time-resolved laser-induced phase transformations in aluminum, Phys. Rev. Letters, 52, 26, 25 June, 1984.
3. Ischenko A. A. et al. // Appl. Phys. 1983. B 32. P. 161.
4. Ischenko A. A., Schafer L., Luo J. Y. and Ewbank J. D. Structural and vibrational kinetics by stroboscopic gas electron diffraction // J. Phys. Chem. 1994. V. 98. P. 8673–8678.
5. Ischenko A. A. et al. Gas-phase electron diffraction investigation of vibrationally active molecules: rhenium hexafluoride // Journal of Molecular Structure. 1993. V. 298. P. 103–111.
6. Ben-Nun M. et al. Direct imaging of excited electronic states using diffraction techniques: theoretical considerations, Chemical Physics Letters. 1996. V. 262. P. 405–414.
7. Elsayed - Ali H. E. and Mourou G. A. Picosecond reflection high-energy electron diffraction // Appl. Phys. Lett. 52 (2), 11 January, 1988.
8. Elsayed - Ali H. E., Herman J. W. and Lok K. K. Picosecond time-resolved electron diffraction studies of laser heated metals, Proc. of the International Conference on Lasers, Dec. 10–14, 1990, San-Diego, California.
9. Elsayed - Ali H. E. Time-resolved reflection high-energy diffraction of metal surfaces // SPIE. 1995. V. 2521. P. 92–102.
10. Aeschlimann M. et al. Time-resolved electron diffraction to study photoinduced molecular dynamics at single crystal surfaces // SPIE. 1995. V. 2521. P. 103–112.
11. Zewail A. H. // Laser femtochemistry. Science. 1988. V. 242, № 4886. P. 1645–1653.
12. Williamson J. C., Dantus M., Kim S. B. and Zewail A. H. Ultrafast diffraction and molecular structure // Chemical physics letters. 1992. V. 196. № 6.

13. Whitnell R. M., Wilson K. R. and Yan Yi. J. and Zewail A. H. Classical theory of ultrafast pump-probe spectroscopy: applications to I₂ photodissociation in Ar solution // Journal of Molecular Liquids. 1994. V. 61. P. 153–165.

14. Zewail A. H. Femtochemistry: Recent progress in studies of dynamics and control of reactions and their transitionstates // J. Phys. Chem. 1996. V. 100. P. 12701–12724.

15. Williamson J. Ch. and Zewail A. H. Clocking transient chemical changes by ultrafast electron diffraction // Nature. 1997. V. 386. 13 March.

16. Schelle v M. Ya. et al. Time-resolved electron diffraction with a femtosecond diffractometer, Proc. of the Symposium on High Speed Photography and Photonics, 1997 (16–18 Dec. 1997, Tokyo). P. 1–7.

RESEARCH OF STRUCTURAL KINETICS OF SUBSTANCE BY A METHOD OF ULTRAFAST ELECTRON DIFFRACTION

V. G. Drobot, M. A. Monastyrski

General Physics Institute of RAS, Moscow, Russia

In the last decade, the time-resolved electron diffraction techniques have been developed as a new experimental approach to study ultrafast processes on the pico/femtosecond time scale. From the computer modelling viewpoint, the main problem is computing and further computer processing of the diffraction pattern, which implies solving of the direct electron beam diffraction problem.