

ЛЕКЦИЯ 10

Сверхбыстрая электронная
дифракция и микроскопия

1926 г. -- открытие электронной дифракции (электронограф)
(Дж. П. Томпсон и Дж. Дэвиссон)

1931-1932 гг. -- изобретение электронного микроскопа
(Р. Руденберг, М. Кноль, Э. Руска)

Непрерывные пучки электронов



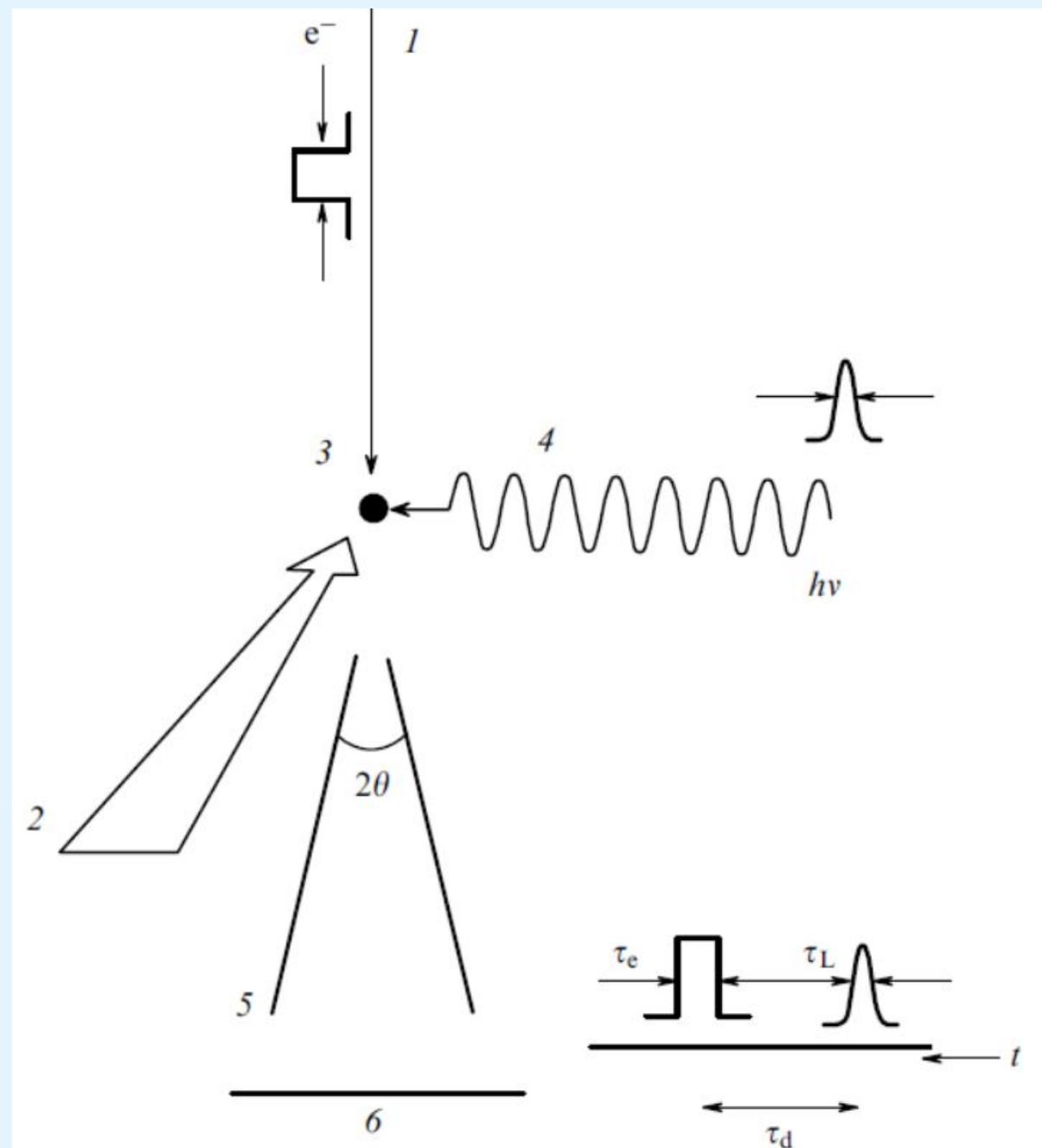
Определение межъядерных расстояний, параметров кристаллической решётки, и средних амплитуд колебаний атомов.

Пространственное разрешение ≈ 1 ангстрем

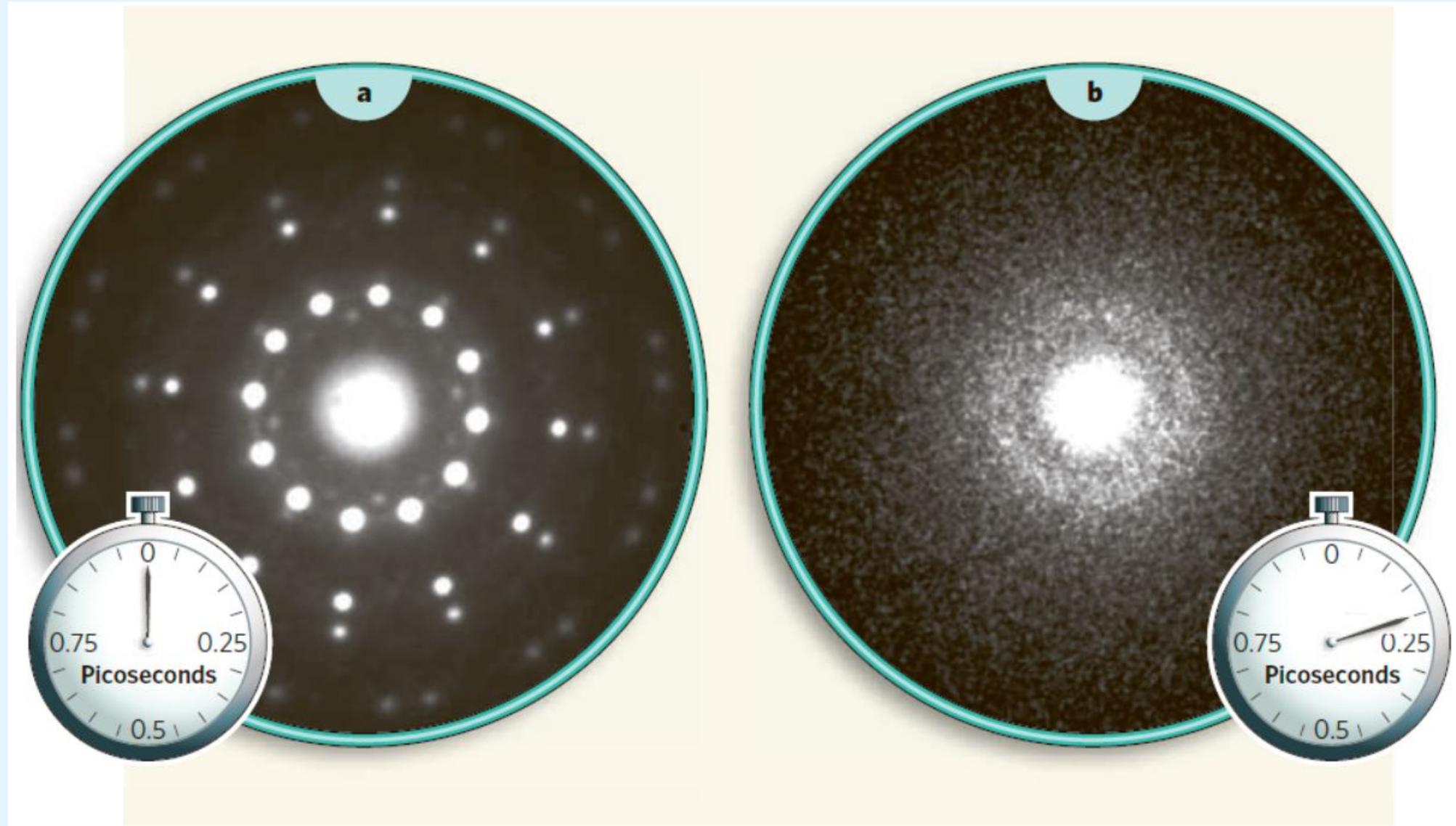
Для исследования динамических процессов необходимы ультракороткие электронные импульсы и их синхронизация с протекающими в веществе процессами

Концепция метода дифракции электронов с временным разрешением

1. Зондирующие электронные импульсы
2. Молекулярный пучок
3. Область рассеяния
4. Возбуждающий лазерный импульс
5. Рассеяние электронов в угол 2θ
6. Регистрация детектором в плоскости

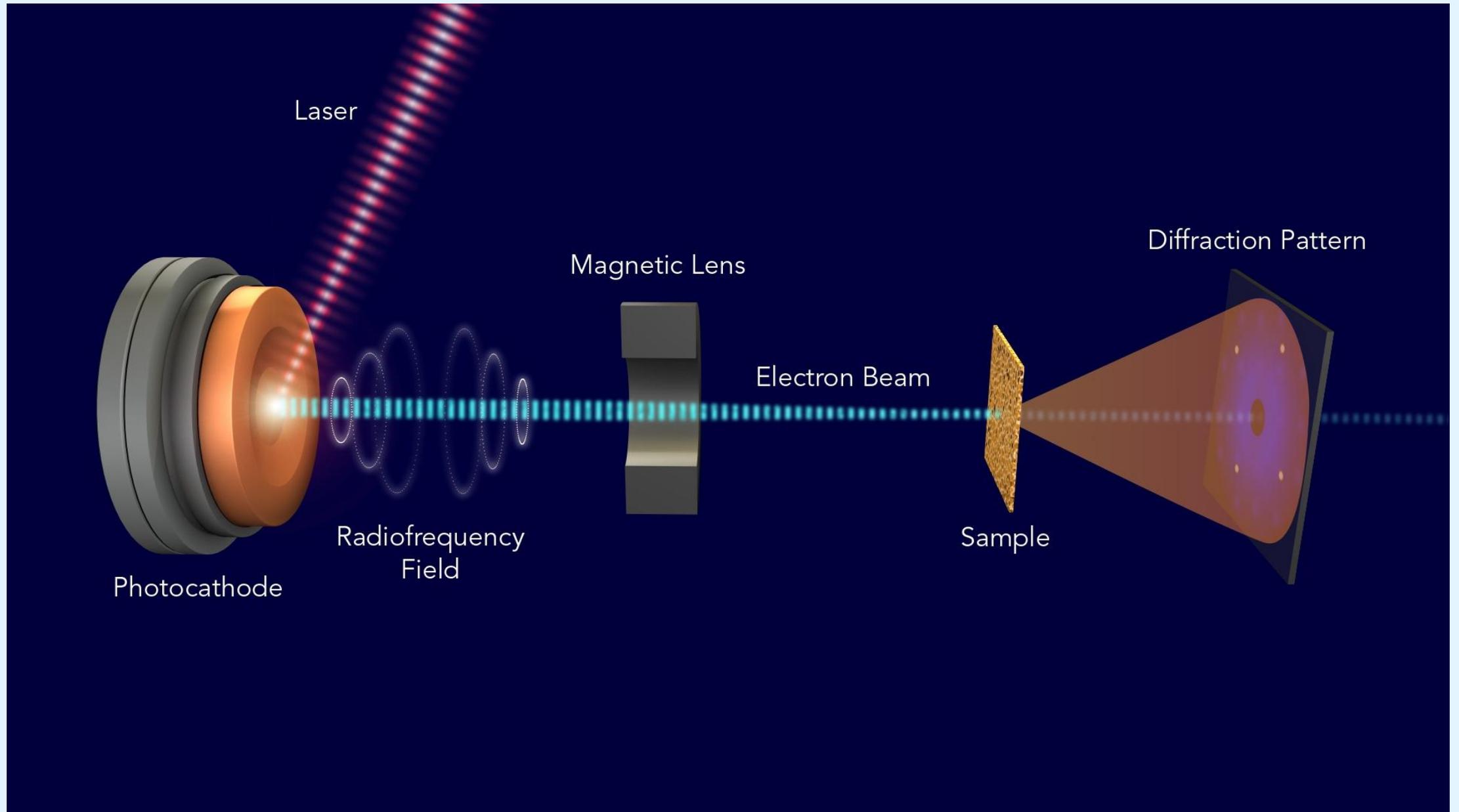


Плавление висмута под действием под действием лазерного излучения



Sciaini, G. et al. Nature 458, 56–59 (2009).

SLAC National Accelerator Laboratory



SLAC National Accelerator Laboratory



Базовые составляющие установки TRED (Time Resolved Electron Diffraction)

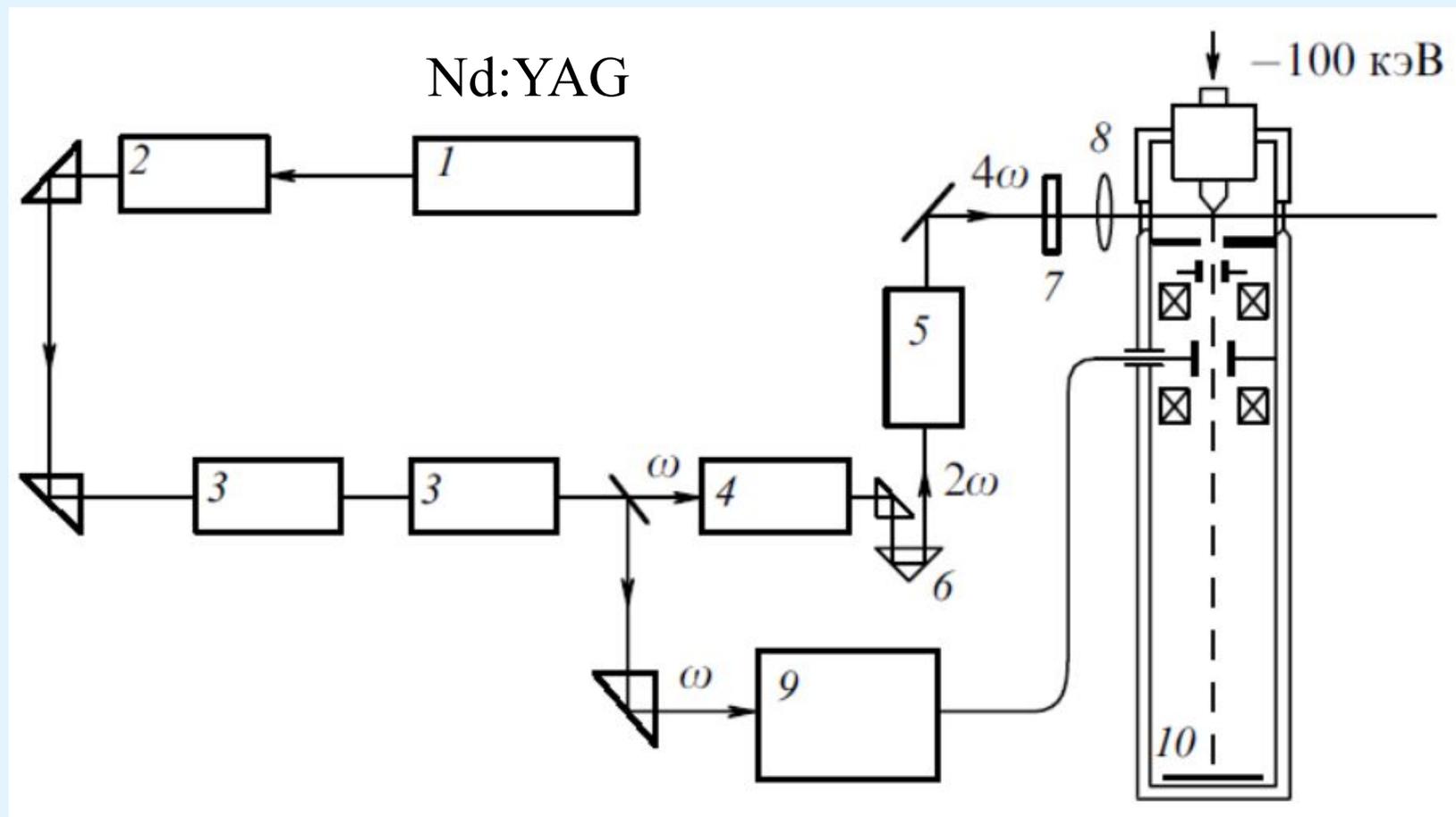
1. Устройство для генерации фемтосекундных лазерных импульсов и последующей генерации ультракоротких электронных импульсов
2. Электронно-оптическая схема синхронизации возбуждающих лазерных импульсов и диагностирующих электронных импульсов
3. Система регистрации электронной дифракционной картины (сбор информации и её обработка)
4. Система измерения длительности электронных импульсов и плотности потока электронов

Первые эксперименты по созданию установки использующей дифракцию электронов с временным разрешением.

1980 г.

Химический и Физический
факультеты МГУ
+
ИПЛИТ РАН
(НИЦТЛ АН СССР)

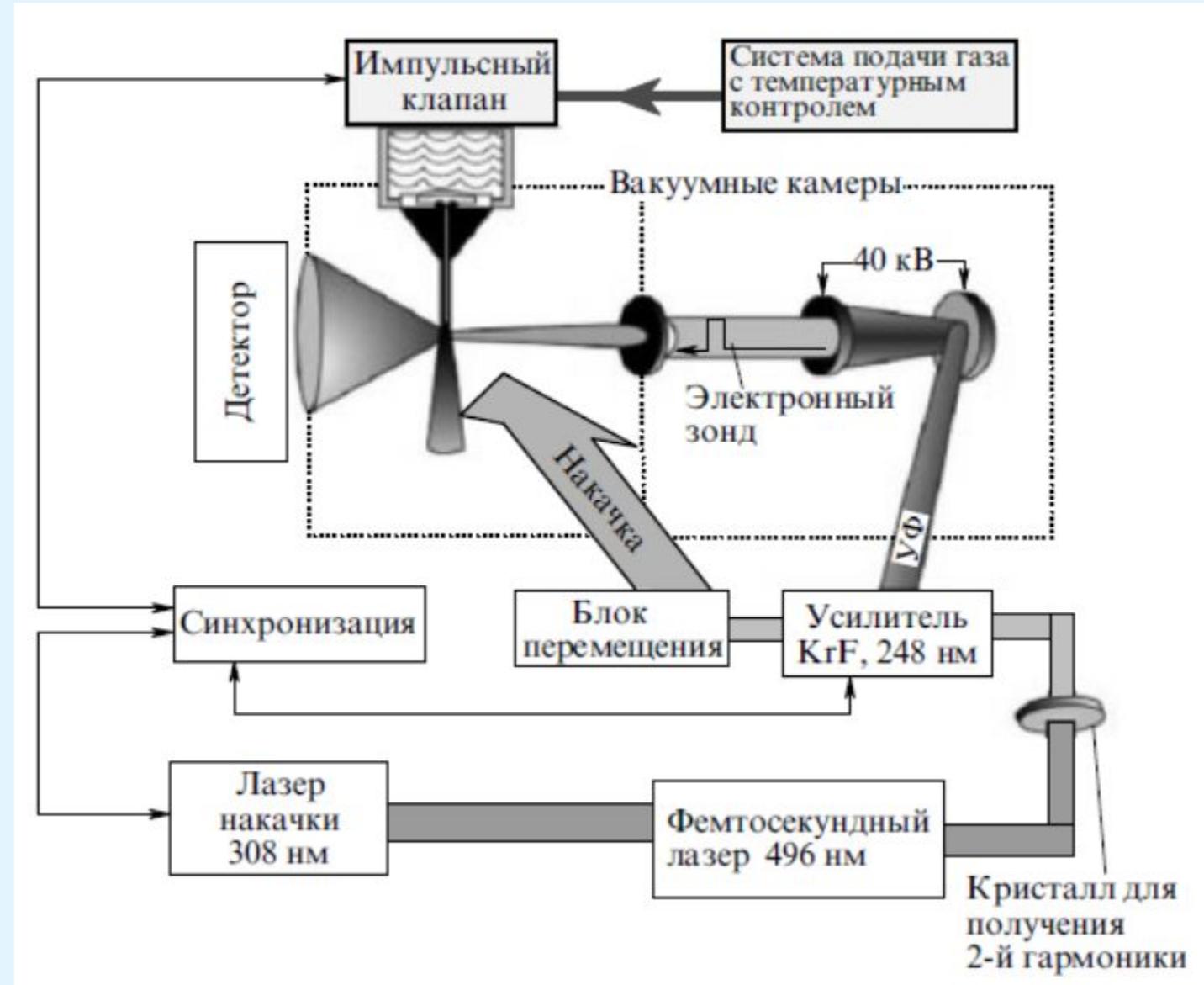
1. Nd:YAG лазер
2. Система генерации одиночных импульсов
3. Усилители
4. Генератор второй гармоники
5. Генератор четвёртой гармоники
6. Кварцевая призма
7. Фильтр
8. Линза
9. Светочувствительное коммутационное устройство



Изучение ядерной динамики вещества с пикосекундным разрешением (CF_3)

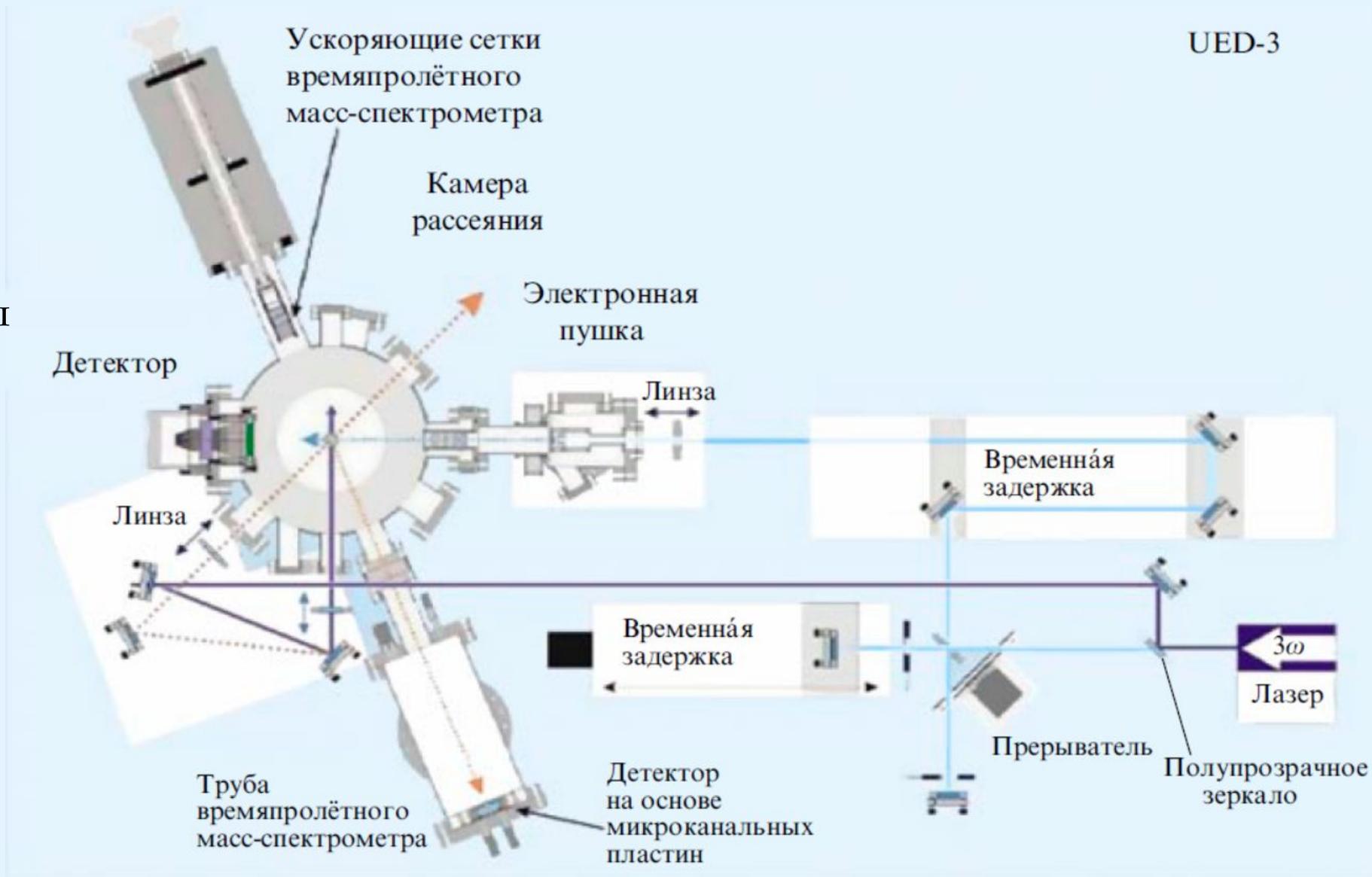
Развитие метода (установка TRED)

1. Импульсное сопло для ввода исследуемого вещества
2. Система оптического усиления сигнала (CCD)
3. Использование внутреннего стандарта (молекул высокочистого азота) для калибровки дифракционной картины
4. Система измерения длительности электронных импульсов и плотности потока электронов

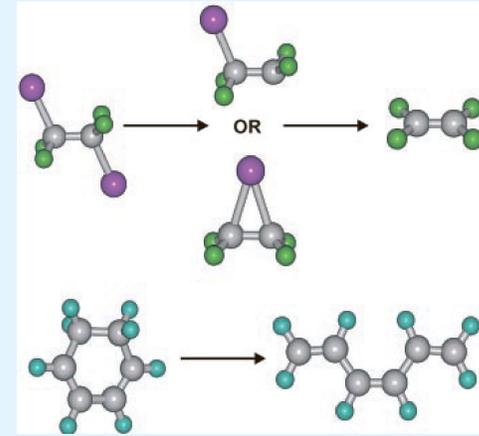
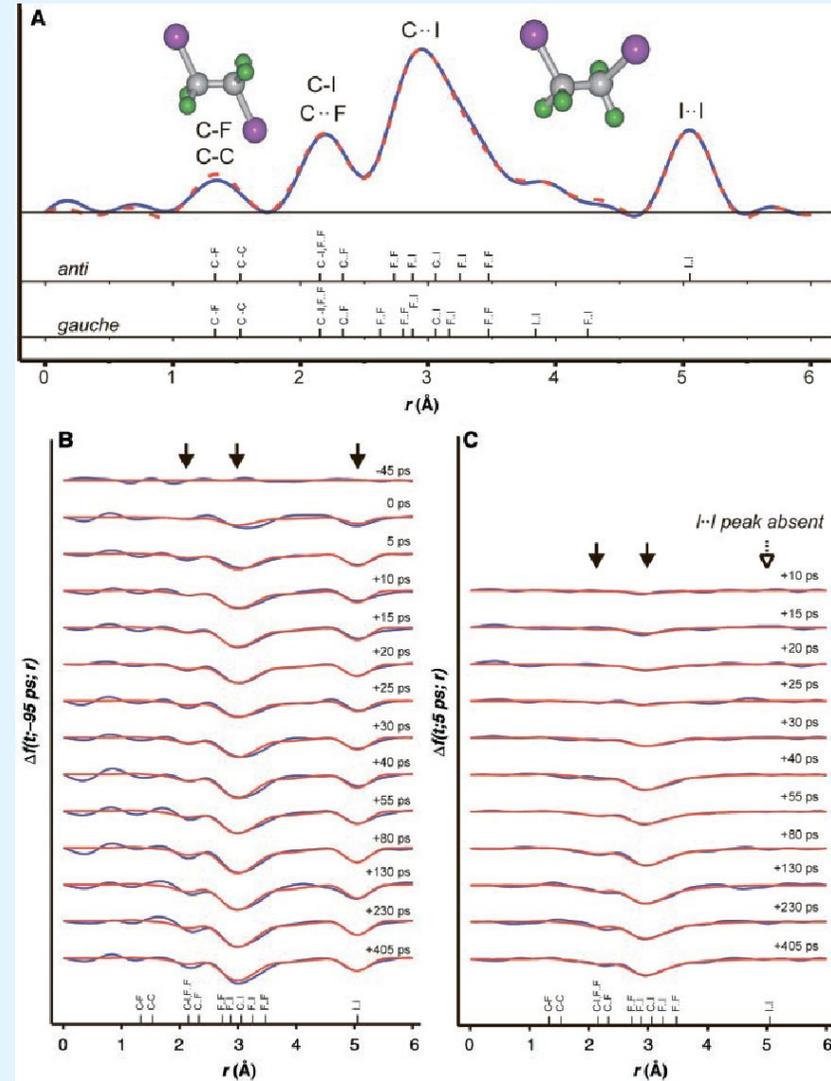
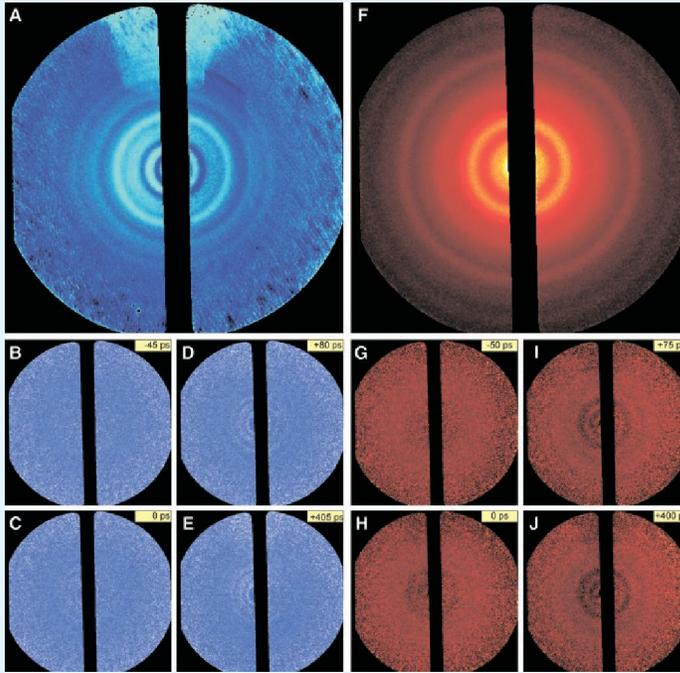


Установка UED-3 сопряжённая с времяпролетным масс-спектрометром (Ultrafast Electron Diffraction)

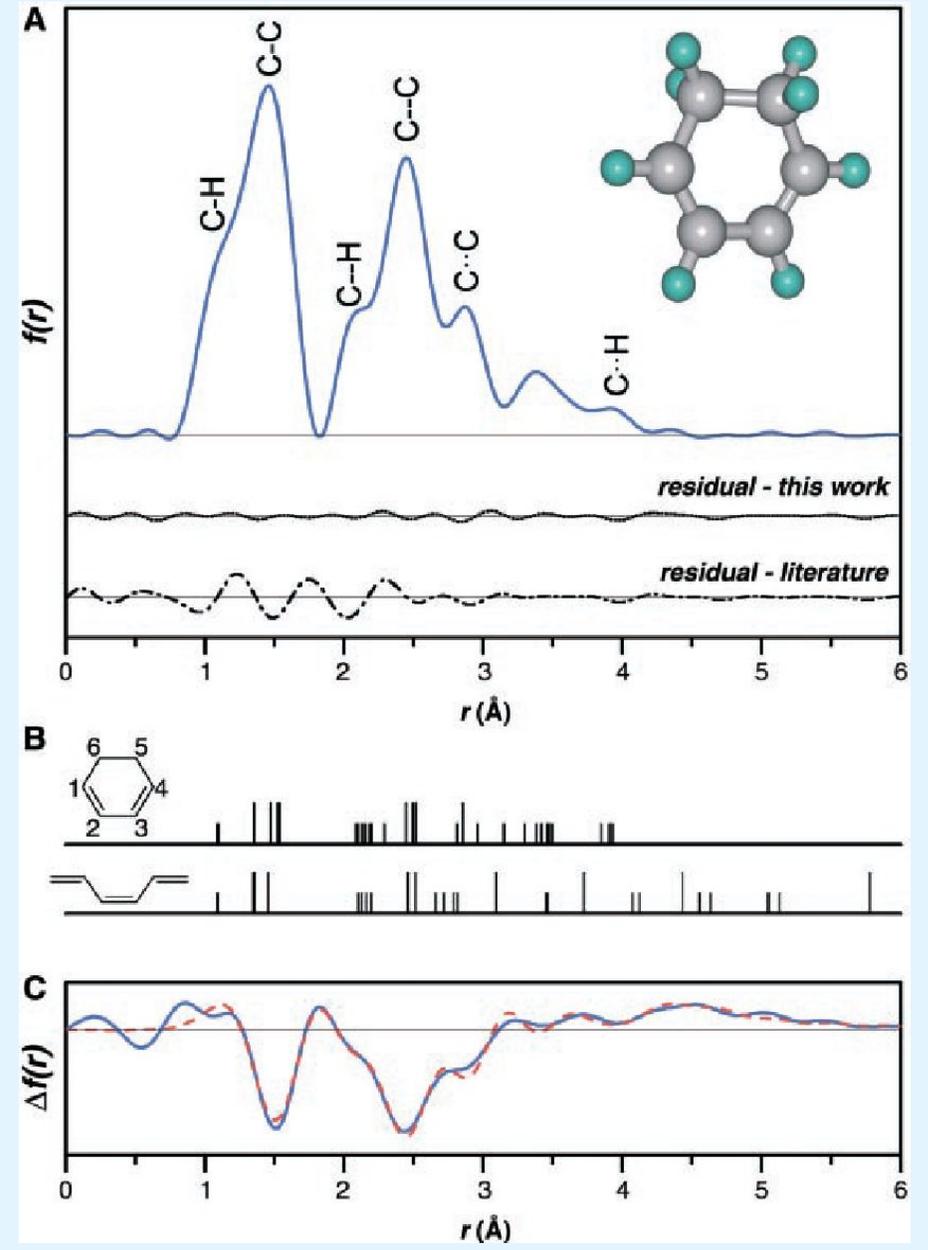
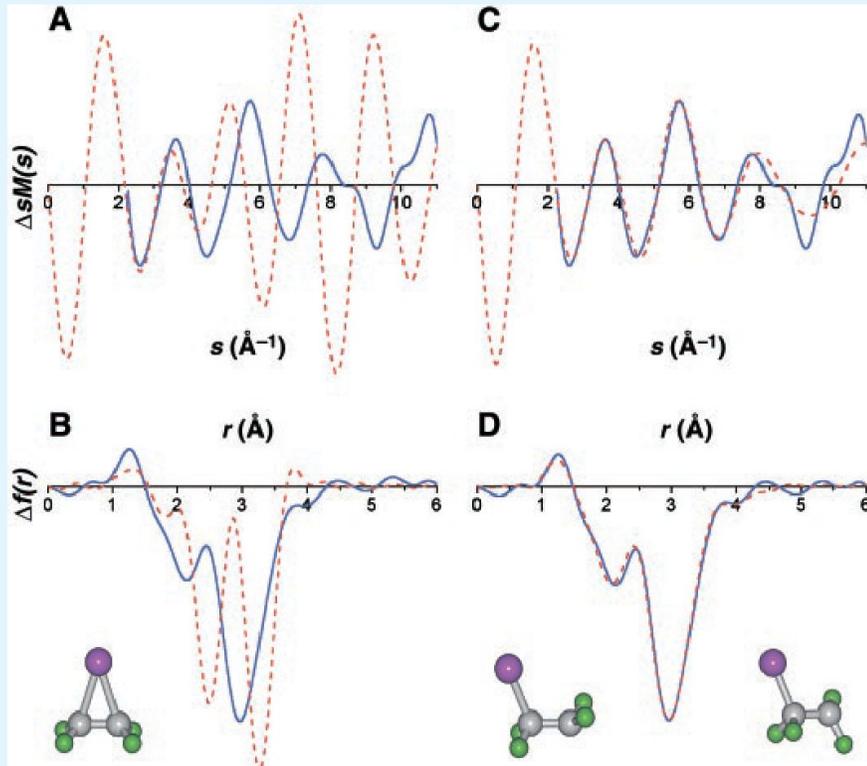
Проведены эксперименты по исследованию структурной динамики свободных молекул и переходных состояний химических реакций.



Эксперименты по исследованию структурной динамики свободных молекул и переходных состояний химических реакций



Эксперименты по исследованию структурной динамики свободных молекул и переходных состояний химических реакций



Ионно-индукционный метод фокусировки

Для определения изменений дифракционной картины на фемтосекундном уровне был разработан ионно-индукционный метод, суть которого заключается в ионизации газа (например CF_3I трифторйодметан) при этом фотоэлектроны, покидая ионизованную область оставляют положительно заряженные ионы, которые действуют как эффективная положительная линза и фокусирует пучок электронов только тогда, когда лазерные и электронные импульсы перекрываются. Это позволяет идентифицировать нулевое время регистрации дифракционной картины t_0 .

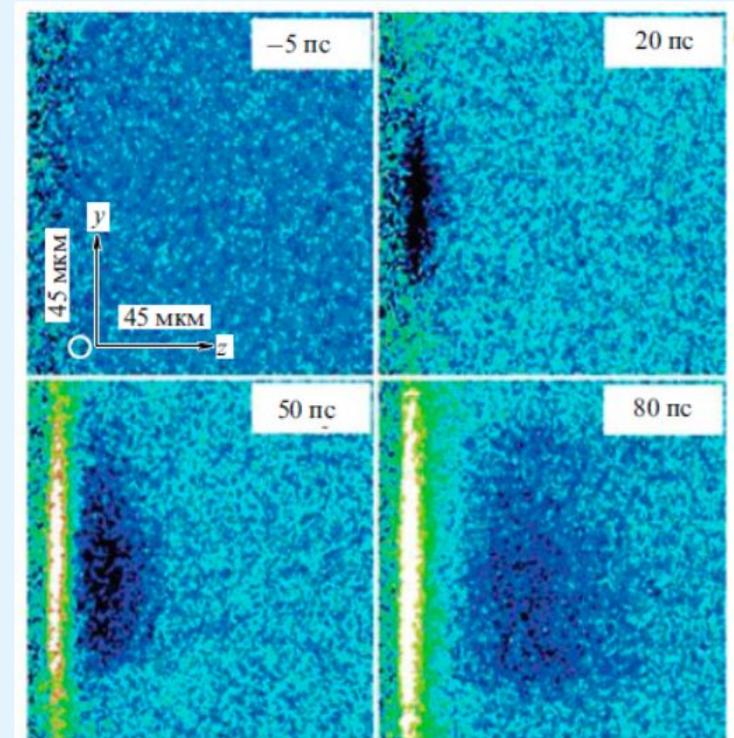
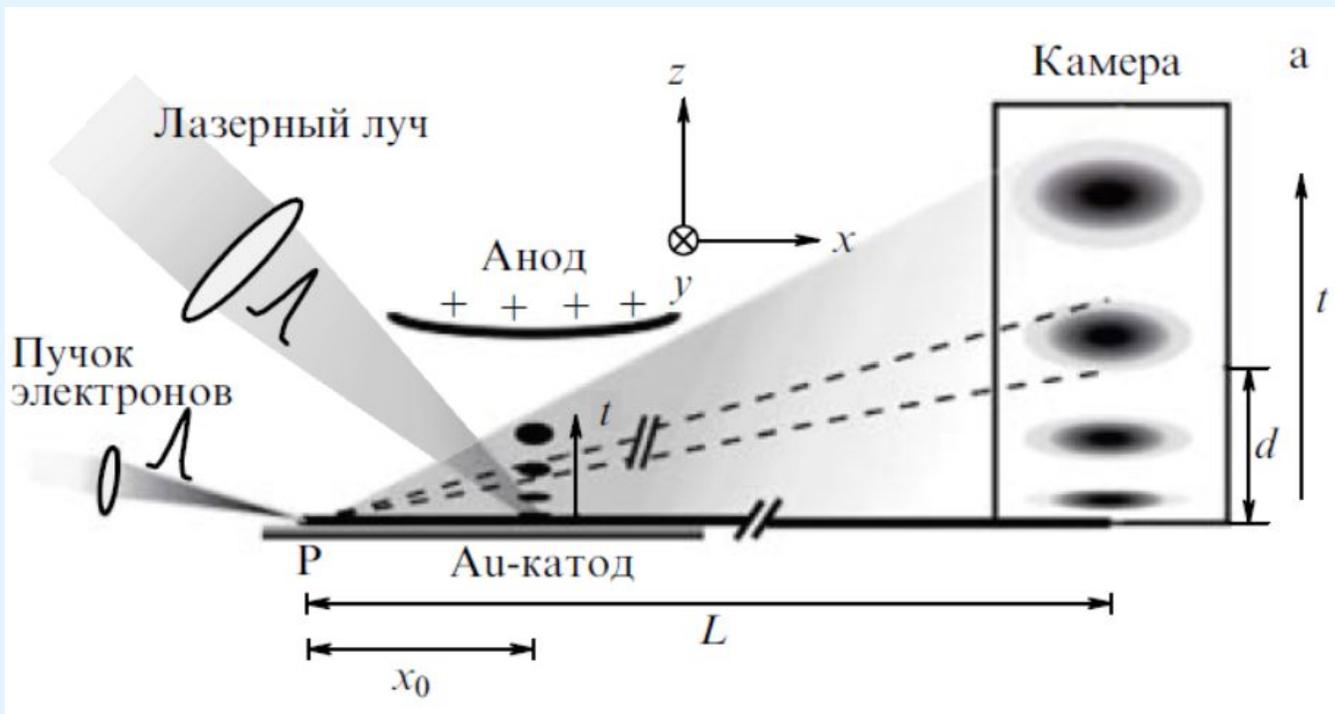
Методика систем отсчёта и синхронизация структур

Существует проблема извлечения информации об изменении структуры молекулы из дифракционных картин вследствие: малого количества молекул, претерпевающих изменения, дифракционные картины содержат распределения как от когерентной, так и от некогерентной (выше из-за отсутствия дальнего порядка в газах) интерференции атом-атомных пар. Методика систем отсчёта состоит в том, чтобы установить базовый сигнал отсчёта *in situ* (например при отрицательном времени). Используя этот сигнал можно получить различие между электронограммой и отдельным сигналом отсчёта. В результате общий фон, являющийся вкладом во все дифракционные картины может быть легко устранён. Погрешность системы обнаружения значительно уменьшена. Значимость вклада переходных структур значительно увеличивается в образцах с выбранной системой отсчёта.

Эффекты объёмного заряда и распределения энергии в электронном сгустке

Возможно ли добиться высокой яркости электронного пучка, сохранив при этом высокое пространственно-временное разрешение? Проблема в пространственно-зарядовом ограничении при высоких потоках фотоэмиссии и кулоновском отталкивании при движении пучка электронов.

Для решения был предложен метод сверхбыстрой теневой проекции изображения электронов. Динамика фотоэлектронов, эмитируемых катодом, изготовленным путём напыления золота на прозрачную тонкую кварцевую подложку (30 нм) происходила под действием лазерных импульсов длительностью 50 фс (266 нм). Интенсивность позволяла получать высокоинтенсивные электронные сгустки, энергия фотонов чуть выше работы выхода электронов для золота (4-4.6 эВ) для узкого распределения по энергиям. В качестве детектора использовалась ССД камера.



Режимы сверхбыстрой электронной дифракции

Conventional *al*

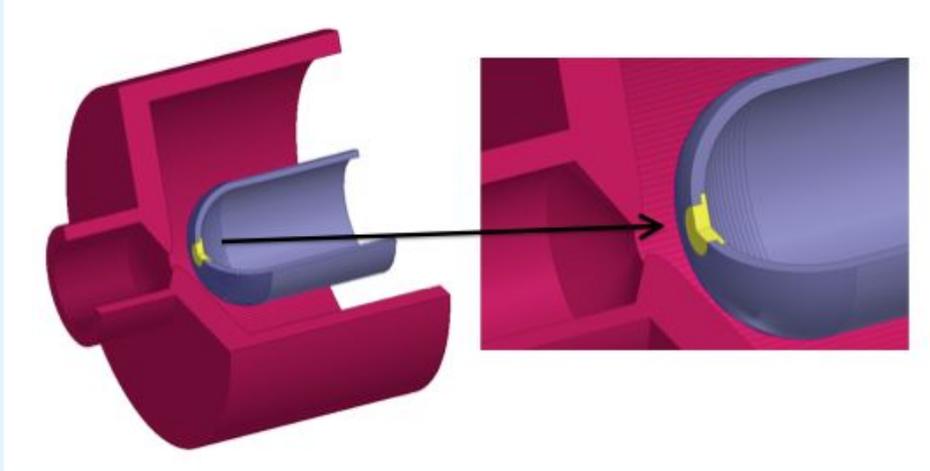
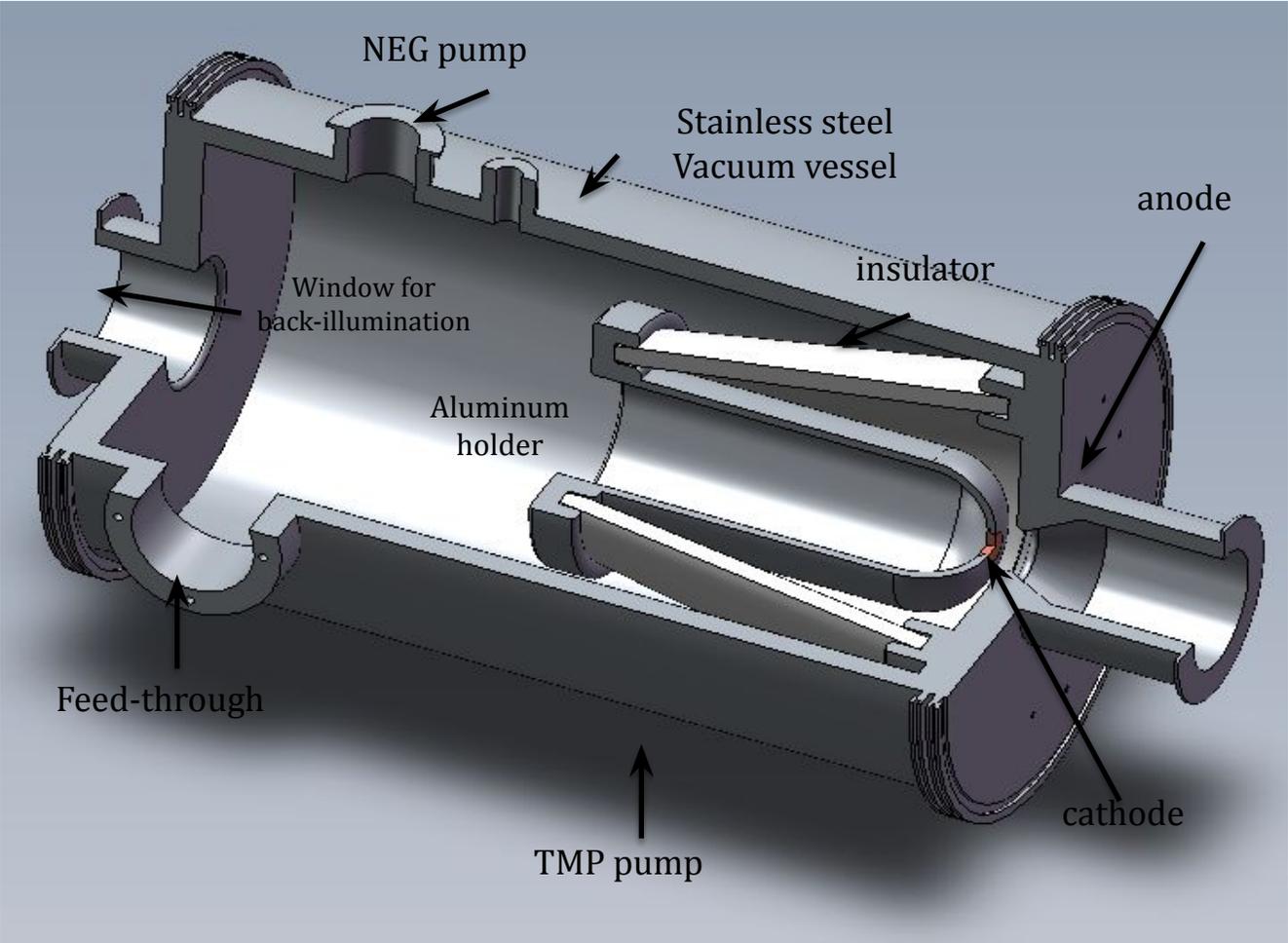
- Low-energy electrons (conventional electron gun)
- Compact system due to larger diffraction angle
- Low SNR (few electrons per bunch in order to reduce space charge >>> pulse broadening)
- Thousands of pulses to obtain a good diffraction pattern

Relativistic *c*

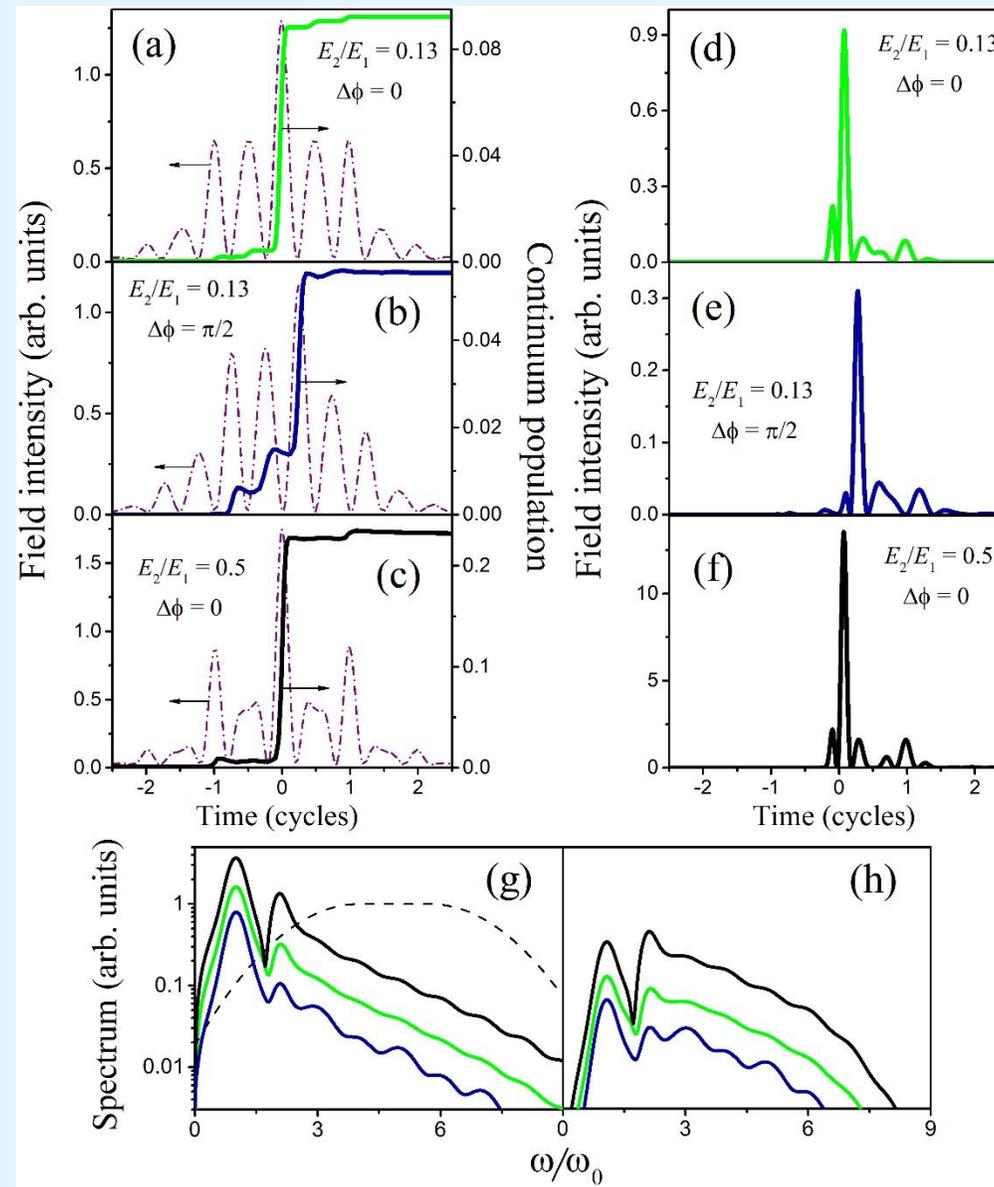
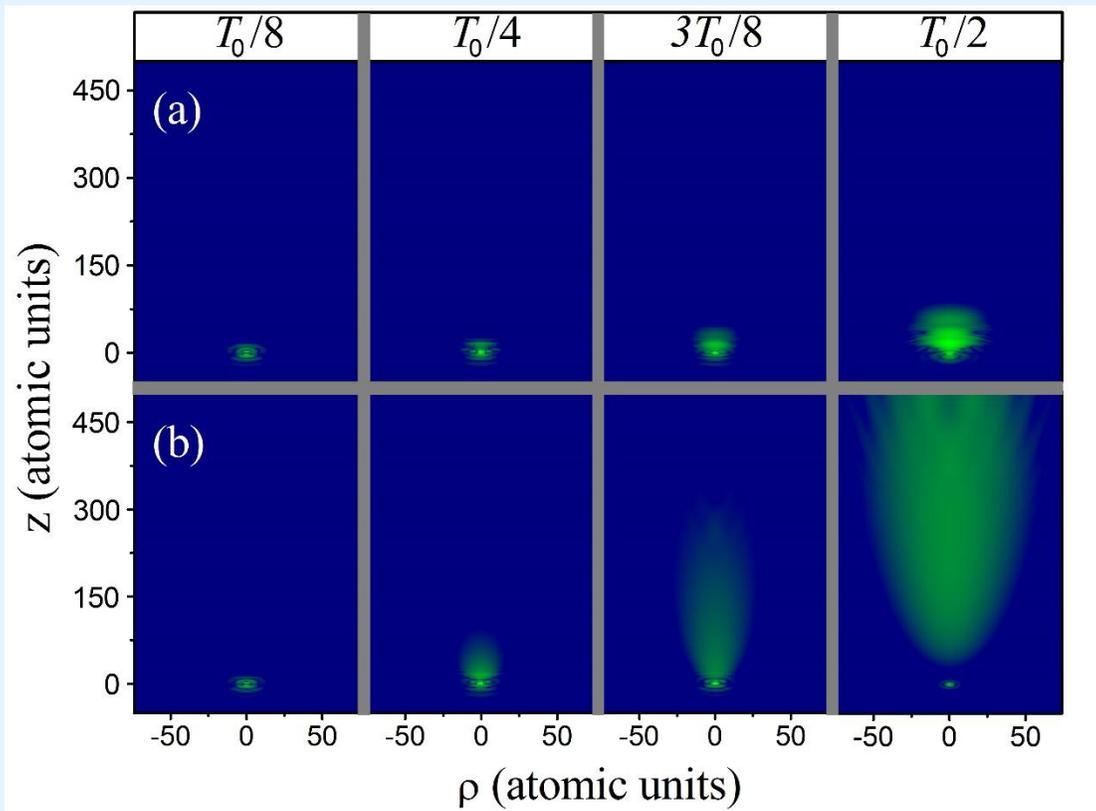
- Need of a relativistic electron Gun
- Longer diffraction camera length
- More intense electron bunches possible due to weaker space charge effects
- Single-shot measurement

Создание и компрессия ультракоротких электронных импульсов

Фотоэлектронная пушка



Генерация ультракоротких электронных импульсов импульсами среднего ИК диапазона



Проблемы при генерации ультракоротких электронных импульсов

Времяпролетная хроматическая абберация

$$v_0 t + \frac{(eF/m_e) t^2}{2} = l$$

$$\Delta\tau_{EF} = \frac{\sqrt{2m_e\Delta E_e}}{eF}$$

$$\Delta E = 0.3 \text{ эВ} \quad F = 10^7 \text{ Вм}^{-1} \longrightarrow \Delta\tau_{EF} \approx 0.7 \text{ пс}$$

(ускорение электронов сопровождается уменьшением длины волны де Бройля)

Времяпролетное удлинение

$$\Delta\tau_{TOF} \approx t_{TOF} \frac{\Delta E_e}{2K}$$

$$\Delta E = 0.3 \text{ эВ} \quad K = 0.3 \text{ кэВ} \quad t_{TOF} = 1 \text{ нс}$$

$$\longrightarrow \Delta\tau_{TOF} \approx 5 \text{ фс}$$

(ускорение электронов сопровождается уменьшением длины волны де Бройля)

Кулоновское расталкивание

$$V + W = \sum_{i,j} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} + \sum_i \frac{m_e v_i^2}{2} = \text{const}$$

$$m_e \frac{\delta v^2}{2} \approx \frac{e^2 N}{16\pi\epsilon_0 \delta r}$$

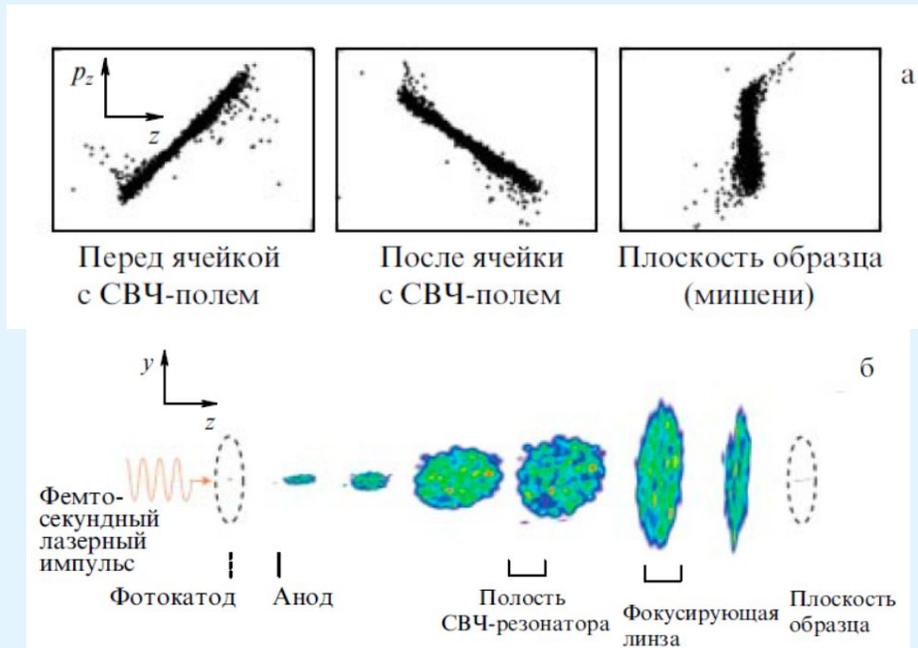
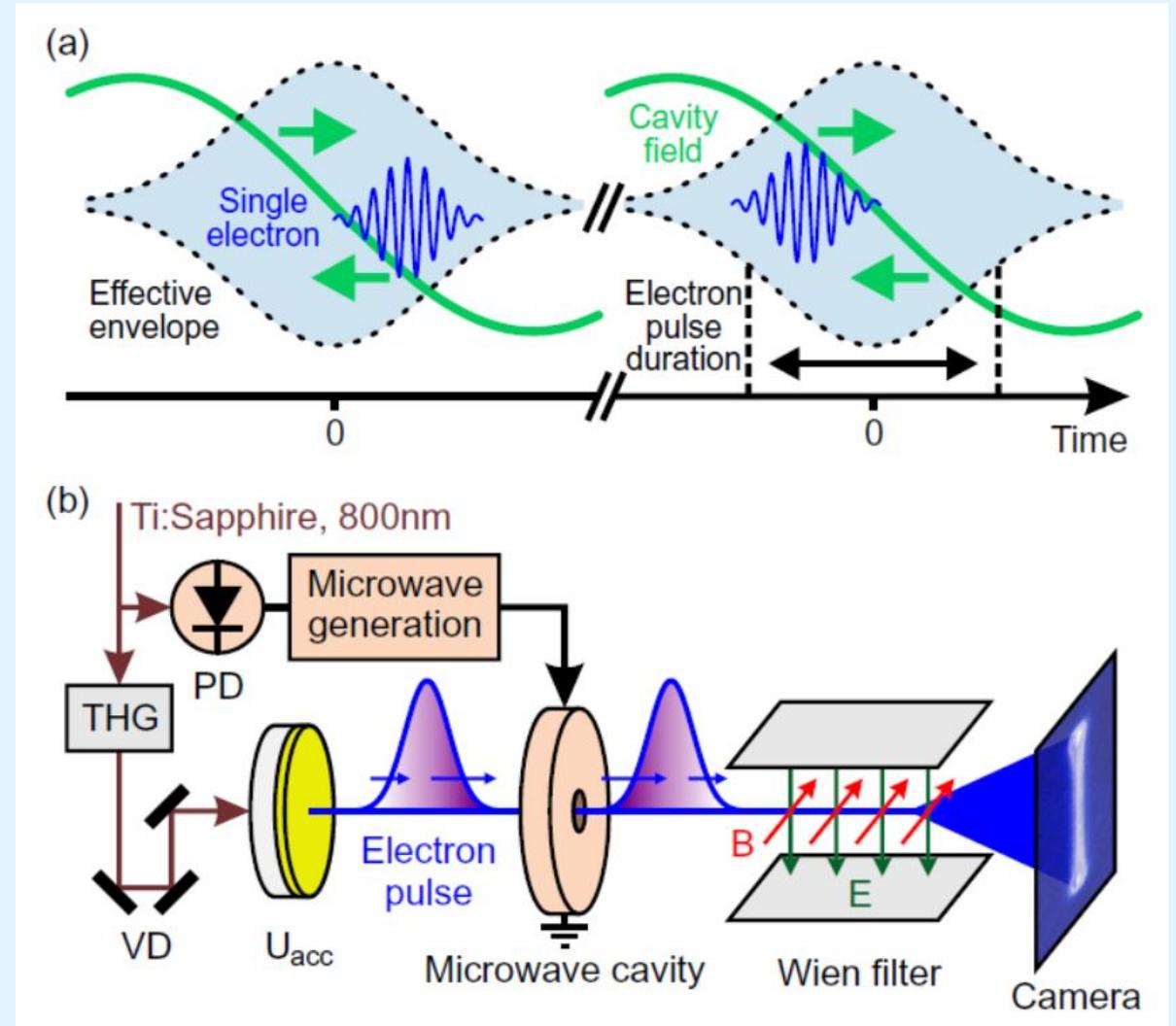
$$\Delta\tau_C \approx \frac{t_{TOF}}{v_e} \sqrt{\frac{e^2 N}{8\pi\epsilon_0 \delta r m_e}}$$

$$v_e \approx 10^8 \text{ м/с} \quad N \approx 10^4 \quad t_{TOF} \approx 1 \text{ пс} \quad \delta r \approx 10 \text{ мкм} \longrightarrow \Delta\tau_C \approx 1.5 \text{ пс}$$

Компрессия ультракоротких электронных импульсов

Радиочастотное сжатие

Специальный импульс, синхронизованный с фемтосекундным лазером, запускает осциллирующее поле в ячейке, через которую пролетает фотоэлектронный сгусток, приготовленный предварительно с помощью фемтосекундного лазерного излучения. В ячейке осциллирующее радиочастотное поле, вектор которого параллелен направлению распространения электронного пучка, фактически тормозит более быстрые электроны и ускоряет более медленные.



Измерение длительности ультракоротких электронных импульсов

Схема Гапонова-Миллера

