

## ЭЛЕКТРОННАЯ МИКРОСКОПИЯ

# Сверхбыстрый просвечивающий электронный микроскоп для исследования динамики процессов, индуцированных фемтосекундным лазерным излучением

С.В.Андреев, С.А.Асеев, В.Н.Баграташвили, Н.С.Воробьев, А.А.Ищенко, В.О.Компанец, А.Л.Малиновский, Б.Н.Миронов, А.А.Тимофеев, С.В.Чекалин, Е.В.Шашков, Е.А.Рябов

*Создан сверхбыстрый просвечивающий электронный микроскоп для проведения исследований динамических процессов в образцах путём возбуждения их фемтосекундными лазерными импульсами и зондирования возникающих быстропротекающих процессов с помощью импульсного фотоэлектронного пучка длительностью  $\sim 7$  пс и регулируемой задержки относительно возбуждающего импульса. Фотоэлектронный пучок с энергией 75 кэВ получен с помощью серебряного фотокаатода, облучаемого фемтосекундным лазерным излучением. Продемонстрировано, что в фотоэлектронном режиме созданный прибор обеспечивает высокое пространственное разрешение: нанометровое – в режиме изображения и атомное – в режиме электронной дифракции. На созданной установке выполнены эксперименты по наблюдению сверхбыстрого взаимодействия лазерно-индуцированного «облака» электронов с импульсным фотоэлектронным пучком. С помощью данного эффекта экспериментально реализован метод пространственно-временного совмещения на образце возбуждающего лазерного и зондирующего электронного импульсов.*

**Ключевые слова:** фемтосекундное лазерное излучение, сверхбыстрая просвечивающая электронная микроскопия, импульсный фотоэлектронный пучок, когерентная структурная динамика.

## 1. Введение

Изучение структурной динамики вещества с высоким пространственно-временным разрешением является одним из ключевых направлений современной науки и представляет несомненный интерес для физики конденсированных сред, молекулярной и химической физики, биофизики, материаловедения [1–6].

Методы сверхбыстрой электронной микроскопии и электронной дифракции относятся к быстро развивающимся направлениям современной мировой науки. Эти методы основаны на зондировании фотоэлектронными сгустками когерентных лазерно-индуцированных процессов в исследуемом веществе, что позволяет объединить высокое временное разрешение, обеспечиваемое современной импульсной лазерной техникой, и атомное пространственное разрешение, присущее дифракционным методам. В результате открывается возможность создания «кинофильма», в котором запечатлено согласованное в четырёхмерном пространственно-временном континууме поведение изучаемого вещества.

**С.В.Андреев, С.А.Асеев, В.О.Компанец, А.Л.Малиновский, Б.Н.Миронов, С.В.Чекалин, Е.А.Рябов.** Институт спектроскопии РАН, Россия, 108840 Москва, Троицк, ул. Физическая, 5; e-mail: ryabov@isan.troitsk.ru

**В.Н.Баграташвили.** ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН, Институт фотонных технологий РАН, Россия, 108840 Москва, Троицк, ул. Пионерская, 2

**Н.С.Воробьев, Е.В.Шашков.** Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38

**А.А.Ищенко.** Московский технологический университет, Московский государственный университет тонких химических технологий им. М.В.Ломоносова, Россия, 119571 Москва, просп. Вернадского, 86  
**А.А.Тимофеев.** Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31

Поступила в редакцию 14 декабря 2016 г., после доработки – 23 января 2017 г.

Наблюдение динамического поведения вещества в пространственно-временном континууме на сверхкоротких временных масштабах является первым шагом, необходимым для объяснения и, в конечном счёте, для контроля далёких от равновесия процессов, явлений и функциональных возможностей исследуемых систем.

В рассматриваемом методе сверхбыстрой электронной микроскопии импульсный пучок фотоэлектронов генерируется при облучении катода лазерным излучением ультракороткой длительности. Это позволяет решить одновременно две важные задачи, необходимые для успешного применения данного метода. Во-первых, использование единого задающего импульсного лазерного источника как для облучения образца, так и для создания фотоэлектронного пучка обеспечивает требуемую временную синхронизацию между возбуждающими образец лазерными импульсами и зондирующими эту систему электронными сгустками. Это открывает возможность исследования когерентной динамики ядер в изучаемом объекте. Регулируемая временная задержка между импульсами возбуждения и зондирования, генерируемыми одним и тем же источником лазерного излучения, достигается за счёт прецизионного изменения оптических путей этих импульсов [1–6]. Во-вторых, фотоэффект, реализуемый с помощью фемтосекундных лазеров, позволяет создавать электронные импульсы достаточно малой длительности [7], что необходимо для высокого временного разрешения этого метода.

Увеличение длительности фотоэлектронных сгустков от исходно фемтосекундной до субпикосекундной и даже пикосекундной при распространении электронного пучка от катода до исследуемой мишени является для метода сверхбыстрой электронной микроскопии ограничивающим фактором [1–7].

Естественный масштаб времени динамических процессов зависит от области исследований. Например, мас-

штаб от аттосекунд до фемтосекунд для электронных переходов; от фемтосекунд до пикосекунд для атомной и молекулярной динамики, а также для структуры кристаллической решётки; от пикосекунд до наносекунд для магнитной и сегнетоэлектрической диффузии, поляризационных процессов, зарождения и роста кристаллов. Естественный масштаб длины для динамических процессов находится в диапазоне от атомного и молекулярного (0.1–10 нм) вплоть до масштаба взаимодействий между биологическими клетками и зёрнами в металлических сплавах.

Пикосекундное временное разрешение представляет несомненный интерес для решения задач, связанных с исследованием разнообразных лазерно-индуцированных быстропротекающих процессов в тонких плёнках. Это, например, изучение сверхбыстрой поверхностной и объёмной динамики в полупроводниках, генерация когерентных акустических фононов, поверхностное плавление наночастиц, неравновесная структурная динамика фазовых превращений и наблюдение отклика адсорбированных молекул на неравновесные структурные изменения поверхности [1–6].

Электронную дифракцию с временным разрешением можно наблюдать с помощью лабораторного экспериментального инструментария, например компактного фемтосекундного электронографа с одиночной магнитной линзой для формирования плоскопараллельного в области образца фотоэлектронного пучка [8]. Заметим, что недавно был также разработан компактный прибор с временным разрешением  $\sim 300$  фс, не содержащий электронно-оптических линз [9] и системы радиочастотного сжатия электронного пучка (см., напр., монографию [1], часть IV).

Вместе с тем, для получения изображения с высоким пространственным разрешением необходим электронный микроскоп. В связи с этим создание сверхбыстрого просвечивающего электронного микроскопа, работающего как в режиме электронной дифракции, так и в режиме изображения, а также демонстрация его возможностей стало основной целью настоящей работы. Такой прибор представляет несомненный интерес для современной области естествознания, в которой лазерно-индуцированные быстропротекающие процессы в веществе изучаются с высоким пространственно-временным разрешением.

В нашей работе в качестве базисного использовался просвечивающий электронный микроскоп Hitachi H-300 с ускоряющим напряжением 75 кВ, разработанный для измерений в непрерывном режиме. При создании сверхбыстрого просвечивающего фотоэлектронного микроскопа необходимо было решить ряд задач, имеющих принципиальное значение.

Во-первых, обеспечить подвод импульсного лазерного излучения в область катода и в зону образца внутри колонны микроскопа, что в значительной степени затруднено конструкцией любого из промышленных приборов с непрерывным электронным пучком, изначально не предназначенных для работы в режиме ультракоротких электронных импульсов. Во-вторых, обеспечить совмещение фотоэлектронных и лазерных импульсов во времени и в пространстве в непосредственной близости от мишени в вакууме. Напомним, что в экспериментах по схеме «накачка–зондирование» необходимо найти нулевую точку отсчёта во времени. В случае фемтосекундной лазерной спектроскопии это обычно достигается путём

нахождения так называемого когерентного артефакта [10, 11]. Однако в случае сверхбыстрой электронной микроскопии данный способ неприменим, а следовательно, решение задачи определения нулевой точки отсчёта требует альтернативного подхода.

Необходимым условием проведения надёжных измерений является также поддержание пространственного перекрытия электронных и световых пучков в области исследуемой мишени, что в сверхбыстром просвечивающем электронном микроскопе осложнено их малыми (несколько десятков микронов) поперечными размерами. В частности, для лазерного пучка, инициирующего сверхбыстрые процессы в твёрдотельных образцах, это, прежде всего, связано с необходимостью иметь на мишени достаточную плотность энергии – порядка  $1 \text{ МДж/см}^2$  ( $\sim 1 \text{ эВ/Å}^2$ ) и выше, что при использовании лазерных источников с частотой следования импульсов от десятков до сотен кГц достигается путём жёсткой фокусировки лазерного излучения.

Высокая частота следования лазерных импульсов, в свою очередь, позволяет достигать требуемого отношения сигнал/шум с помощью зондирующих образцов с небольшим числом электронов. Это также дает возможность обеспечить режим неразрушающего исследования образца и уменьшить расплывание электронного сгустка вследствие кулоновского расталкивания электронов. Однако при таком подходе повышаются требования к системе детектирования электронов. Кроме того, режим малых экспозиций представляет особый интерес для исследования, например, органических структур и биологических объектов.

В настоящей работе все перечисленные задачи были решены. Создан сверхбыстрый просвечивающий фотоэлектронный микроскоп, способный проводить измерения в режиме как изображения, так и электронной дифракции. Выполнены эксперименты по наблюдению сверхбыстрого взаимодействия лазерно-индуцированного облака электронов с импульсным фотоэлектронным пучком, демонстрирующие возможности этого микроскопа.

## 2. Эксперимент

Принципиальная схема сверхбыстрого просвечивающего фотоэлектронного микроскопа представлена на рис. 1. Основой для создания такого прибора послужил действующий просвечивающий электронный микроскоп Hitachi H-300, рассчитанный на работу с непрерывным электронным пучком с энергией 75 кэВ [12].

Электронный пучок, облучающий образец, формируется с помощью двух магнитных линз – МЛ1, уменьшающей диаметр пятна электронного пучка, образующегося на выходе из катодного узла, и МЛ2, фокусирующей промежуточное изображение пятна на поверхность образца. Регулировкой фокусного расстояния МЛ2 можно изменять яркость пятна на образце. Между линзами с помощью входящего в состав электронного микроскопа узла можно помещать калиброванные диафрагмы Д, уменьшающие диаметр электронного пучка и его расходимость. Изображение образца формируется линзой объектива МЛ3 и затем увеличивается системой, состоящей из одной или двух линз МЛ4 и МЛ5 (в зависимости от требуемого коэффициента увеличения). Изображение образуется на поверхности, покрытой люминофором, и может наблюдаться визуально или регистрироваться с помощью фотопластины.

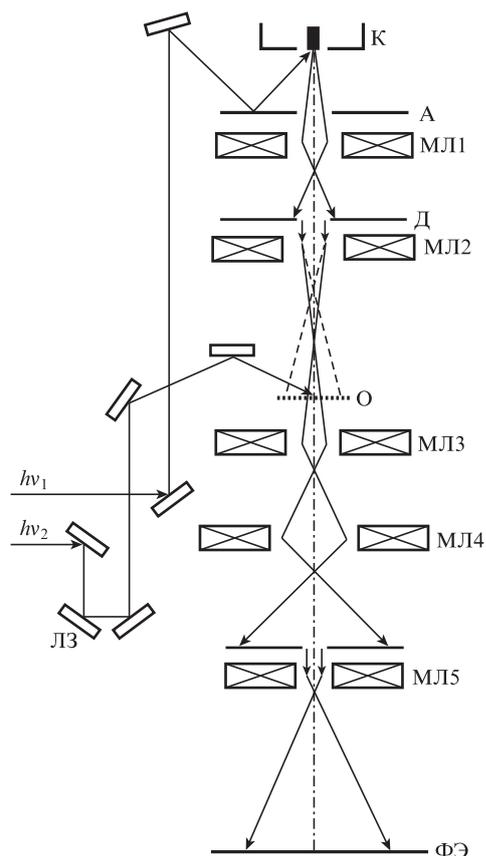


Рис.1. Схема сверхбыстрого электронного микроскопа на базе Hitachi H-300:

К, А – катод и анод узла эмиссии и ускорения электронов; МЛ1, МЛ2 – магнитные линзы конденсора осветительной системы; Д – узел со сменными диафрагмами; О – образец; МЛ3 – магнитная линза объектива; МЛ4 – промежуточная линза; МЛ5 – проецирующая линза; ФЭ – флуоресцентный экран; ЛЗ – оптическая линия задержки.

Для осуществления работы электронного микроскопа в режиме «накачка – зондирование» были внесены изменения в узел эмиссии электронов микроскопа и в систему регистрации электронного пучка. Кроме того, в область размещения образца внутри электронного микроскопа была добавлена система ввода лазерного излучения.

Модификация эмиттера электронов микроскопа осуществлялась путем замены стандартного проволочного термокатода на фотокатод, изготовленный в виде стержня диаметром 0.8 мм с полированным торцом.

Лазерное излучение заводилось в микроскоп через дополнительно изготовленный в корпусе микроскопа вакуумно-плотный ввод с кварцевым окном (рис.2). Лазерный пучок отражался от поверхности анода ускоряющей системы микроскопа и фокусировался на торцевую поверхность фотокатода в пятно диаметром менее 100 мкм. Фокусировка лазерного пучка осуществлялась кварцевой линзой с фокусным расстоянием 20 см. Для увеличения коэффициента отражения лазерного пучка поверхность анода полировалась и покрывалась тонкой плёнкой алюминия путем термического напыления.

Для предварительной настройки попадания лазерного излучения в область катода использовалось зеркало, закрепленное на прецизионной и моторизованной (для дистанционного управления) подвижке. Пятно от сфокусированного пучка наблюдалось с помощью видеокаме-

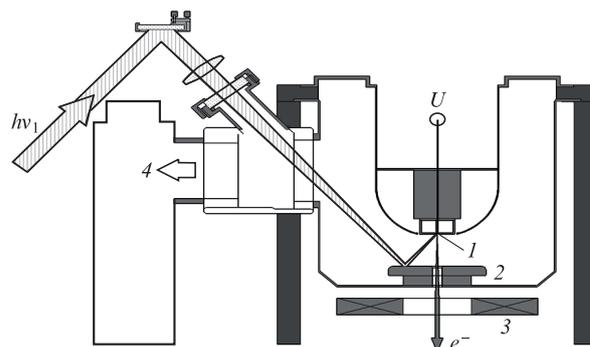


Рис.2. Схема заведения лазерного пучка в катодный узел микроскопа: 1 – фотокатод; 2 – анод; 3 – коллимирующая система микроскопа; 4 – вакуумная откачка. Напряжение на фотокатод относительно анода и корпуса микроскопа  $U = -75$  кВ, расстояние от фотокатода до анода  $\sim 20$  мм.

ры. Окончательная настройка положения лазерного излучения на торцевой поверхности фотокатода осуществлялась по величине интенсивности электронного пучка путём наклона лазерного пучка, входящего в микроскоп, и с помощью его фокусировки/дефокусировки.

Для фотоэмиссии электронов из фотокатода использовалась либо третья гармоника (длина волны 270–283 нм) фемтосекундного лазера (Mai-Tai, Spectra-Physics), либо четвёртая гармоника (263 нм) фемтосекундного волоконного лазера (ANTAUS, Авеста-Проект). В качестве материалов фотокатода были опробованы несколько металлов и сплавов с работой выхода электронов, меньшей энергии кванта используемого лазерного излучения. Наилучшее сочетание эффективности и стабильности было достигнуто при использовании фотокатода из серебра, который и применялся в дальнейших исследованиях.

В модифицированном микроскопе была измерена средняя величина тока фотоэлектронного пучка при отключённом увеличении микроскопа (дифракционный режим). Для проведения этих измерений электронный пучок в микроскопе перекрывался цилиндром Фарадея и затем регистрировался сигнал, который возникал на сопротивлении, подключённом последовательно с цилиндром. В измерениях использовалось излучение четвёртой гармоники (энергия кванта 4.72 эВ) фемтосекундного волоконного лазера с длительностью импульсов  $\sim 300$  фс и частотой их следования  $f_L = 500$  кГц. При средней мощности излучения 10 мВт был зарегистрирован ток  $\sim 22$  пА. С учётом частоты следования импульсов число фотоэлектронов в единичном сгустке по оценке составило  $\sim 280$ , что в пересчёте на квантовую эффективность фотокатода соответствует  $\sim 10^{-8}$  электронов на один квант излучения. Следует отметить, что полученная квантовая эффективность значительно меньше квантовой эффективности серебра, из которого изготовлен катод ( $2 \times 10^{-5}$  по данным работы [13]), что, по-видимому, говорит об относительно невысокой эффективности извлечения фотоэлектронов из области катода и дальнейшего формирования из них электронного пучка. Кроме того, на квантовую эффективность фотоэмиссии электронов значительное влияние может оказывать качество поверхности фотокатода и условия её подготовки, а также остаточный газ при относительно невысоком вакууме в колонне используемого микроскопа, что отличает условия, в которых проводились наши измерения, от экспериментальных условий в работе [13]. Вместе с тем отметим, что с увеличением ин-

тенсивности излучения на фотокатоде можно получать до 1000 и более электронов в импульсе даже при полученной нами квантовой эффективности.

Введение в электронный пучок диафрагмы диаметром 70 мкм с помощью входящего в состав электронного микроскопа узла со сменными диафрагмами улучшало качество пучка и уменьшало его расходимость, однако значительно (~50 раз) уменьшало интенсивность электронного пучка в области образца. Тем не менее при наличии высокочувствительной системы регистрации, позволяющей работать в режиме счёта электронов (см. ниже), полученного потока фотоэлектронов достаточно для проведения исследований. Более того, необходимым условием получения предельно коротких фотоэлектронных импульсов является достаточно малое количество электронов в импульсе. Выполнение этого условия позволит уменьшить временное уширение импульса под действием кулоновского расталкивания зарядов.

Начальная длительность электронного сгустка, полученного в результате фотоэмиссии из твёрдотельного катода, определяется временными характеристиками фемтосекундного лазерного импульса, облучающего фотокатод. При распространении импульсный фотоэлектронный пучок уширяется во времени [1–7, 14, 15]. Рассмотрим два основных механизма, обуславливающих это поведение.

Во-первых, ускорение фотоэлектронов в статическом электрическом поле вблизи катода (в настоящей работе – до энергии 75 кэВ) вызывает удлинение электронного сгустка на величину времяпролётной хроматической aberrации [4, 14], которая связана с начальным разбросом кинетической энергии электронов:

$$\tau_F = \frac{\sqrt{2m_e \Delta E}}{eF}, \quad (1)$$

где  $m_e$  и  $e$  – масса и заряд электрона;  $\Delta E$  – ширина распределения начальной кинетической энергии фотоэлектронов;  $F$  – напряжённость электрического поля в ускоряющем промежутке. Для оценок примем величину  $\Delta E$  равной разности энергии кванта (4.7 эВ) и работы выхода электронов (4.3 эВ) в серебре [13]. Тогда  $\Delta E \approx 0.4$  эВ, и при напряжённости ускоряющего электрического поля (считаем его однородным)  $F \approx 3.8 \times 10^6$  В/м имеем  $\tau_F \sim 600$  фс.

Заметим, что данный механизм расплывания электронного импульса, при котором формирование пучка быстрых электронов происходит вследствие ускорения пучка в электростатическом поле, не связан с кулоновским расталкиванием одноимённо заряженных частиц. Этот механизм будет проявляться даже в экспериментах с зондирующими импульсами, содержащими несколько фотоэлектронов, при усреднении экспериментальных данных по многим лазерным импульсам.

Как следует из (1), для формирования сверхкоротких фотоэлектронных импульсов необходимо использовать сильное электростатическое поле в ускоряющем промежутке. Ограничением здесь является вакуумный пробой между ускоряющими электродами.

Второй фактор, приводящий к уширению импульса во времени – кулоновское расталкивание зарядов в пучке. Существуют разные физические модели, описывающие влияние этого фактора [1, 16, 17]. Это уширение существенно зависит от времени распространения электронного пучка. При временах ~1 нс (как в используемом микроскопе) расчёты величины уширения на основе этих моде-

лей приводят к близким результатам. Чтобы оценить величину уширения для данного микроскопа, воспользуемся формулами (19) и (22) из работы [16], описывающими уширение электронного импульса при распространении в ускоряющем промежутке микроскопа,

$$\tau_{C1} = \frac{4l^2 N \sqrt{em_e}}{\pi \sqrt{2U^3} \varepsilon_0 d^2}, \quad (2)$$

и при движении ускоренного до 75 кэВ электронного импульса от анода до образца,

$$\tau_{C2} = \frac{L^2 N \sqrt{em_e}}{\pi \sqrt{2U^3} \varepsilon_0 d^2}, \quad (3)$$

где  $l$  – длина ускоряющего промежутка;  $L$  – длина пути, пройденного пучком от анода до образца;  $N$  – число электронов в импульсе;  $U$  – напряжение на ускоряющем промежутке;  $d$  – диаметр пучка;  $\varepsilon_0$  – электрическая постоянная. Для оценок используем следующие параметры микроскопа:  $l = 20$  мм,  $L = 0.2$  м,  $U = 7.5 \times 10^4$  В,  $N = 280$ , диаметр электронного пучка в ускоряющем промежутке  $d = 35$  мкм (диаметр пятна лазерного излучения на фотокатоде), диаметр пучка в области дрейфа  $d = 30$  мкм (диаметр пучка в области образца). В результате получим  $\tau_{C1} \approx 0.2$  пс и  $\tau_{C2} \approx 6$  пс.

Суммируя вклады (выражения (1)–(3)), получаем оценку длительности фотоэлектронных импульсов:  $\tau_p \approx 7$  пс.

Следует отметить, что при расчёте уширения из-за кулоновского расталкивания зарядов диаметр пучка считался неизменным. В реальности радиус пучка по мере его распространения изменяется (см. рис.1), что влияет на скорость уширения пучка и на конечную величину уширения. Детальный анализ схемы распространения пучка показывает, что при выбранных значениях его диаметра (на границах распространения от катода до образца) полученные выше оценки являются, по-видимому, оценками верхней границы величины уширения.

Для наблюдения и регистрации электронного пучка, прошедшего через образец, фотографическая регистрация изображения в микроскопе была заменена фотоэлектронной регистрацией с помощью цифровой видеокамеры и записью изображения на компьютер. В системе регистрации использовалась вакуумно-плотная волоконно-оптическая пластина (ВОП), которая разделяла вакуумную и невакуумную части системы. Для формирования оптического изображения электронного пучка на верхнюю поверхность ВОП наносился слой люминофора, на который напылялся тонкий электропроводящий слой алюминия, прозрачный для электронов с энергией 75 кэВ. Изображение электронного пучка, падающего на расположенную в вакуумной части микроскопа верхнюю поверхность ВОП, передавалось на ее нижнюю поверхность и регистрировалось цифровой видеокамерой C11440-22C (Hamamatsu), оснащенной объективом Nikkor 24 (Nikon).

Регистрация и обработка изображения осуществлялись на компьютере, подсоединенном к видеокамере, с помощью специального программного обеспечения, которое позволяло накапливать сигнал в течение заданного промежутка времени и измерять среднюю яркость в выбранной области изображения образца. Кроме того, программное обеспечение позволяло синхронно с накоплением сигнала осуществлять управление моторизованной оптической линией задержки (см. рис.1).

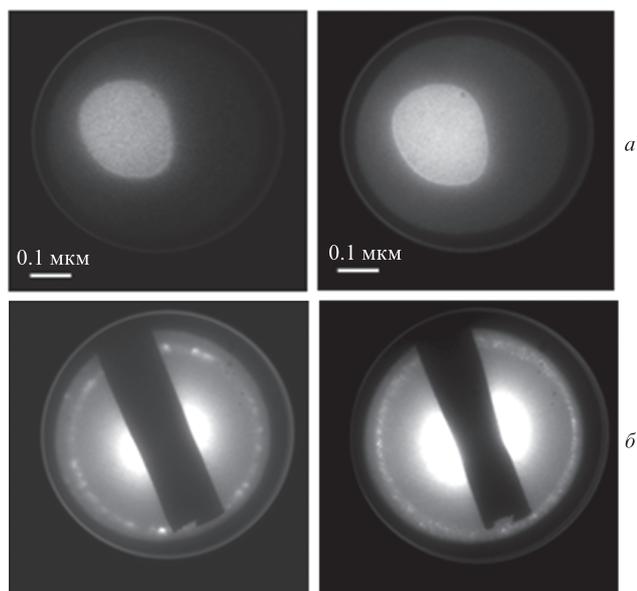


Рис.3. Изображения двух образцов, полученные в фотоэмиссионном (слева) и термоэмиссионном (справа) режимах работы электронного микроскопа:

*a* – микроотверстия в углеродной плёнке с увеличением  $7 \times 10^4$ , время накопления сигнала составляет 4 с в фотоэмиссионном и 100 мс в термоэмиссионном режимах работы электронного микроскопа; *b* – дифракционные картины с первыми порядками дифракции от алюминиевых наночастиц на углеродной подложке; для отсеечения излучения в нулевом порядке дифракции использована заслонка.

На рис.3 представлены изображения для двух образцов, полученные в фотоэмиссионном и термоэмиссионном режимах работы электронного микроскопа. В фотоэмиссионном режиме использовалось УФ излучение фемтосекундного лазера Mai-Tai, работающего с частотой следования импульсов 80 МГц. Видно, что изображения, полученные в фотоэмиссионном режиме с импульсным фотоэлектронным пучком, хорошо повторяют изображения, полученные в термоэмиссионном режиме. Изображения на рис.3 получены без лазерного возбуждения образца и являются экспериментальным подтверждением сохранения основных параметров микроскопа после его реконструкции для работы с импульсным фотоэлектронным источником.

На рис.4 представлена схема ввода в микроскоп лазерного излучения для возбуждения быстропротекающих процессов в образце. Ввод излучения осуществлялся с помощью поворотного зеркала через кварцевое окно, которое крепилось в технологическом отверстии в стенке

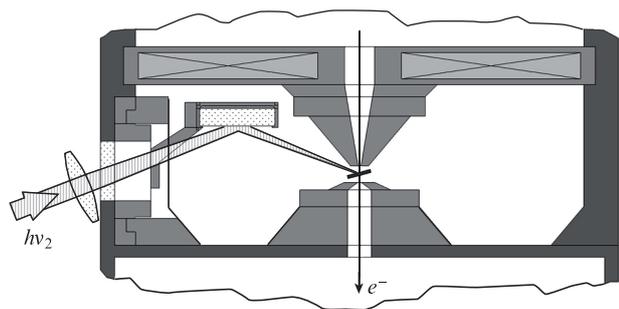


Рис.4. Схема ввода в колонну электронного микроскопа лазерного излучения для возбуждения быстропротекающих процессов в образце.

электронного микроскопа. Для увеличения угла между лазерным пучком и плоскостью размещения образца внутри микроскопа было закреплено дополнительное зеркало. Ограниченное пространство в колонне электронного микроскопа не позволило сделать этот угол больше  $22^\circ$ , однако и такого угла наклона было достаточно для того, чтобы весь пучок попадал на поверхность образца. В случае необходимости можно было дополнительно увеличить этот угол на  $10^\circ$ – $15^\circ$  путём наклона плоскости образца по отношению к горизонтальной плоскости, как показано на рис.4.

Для определения возможностей модифицированного электронного микроскопа были проведены эксперименты по наблюдению сверхбыстрой эмиссии электронов из металлического образца под действием фемтосекундных лазерных импульсов. Идея эксперимента состоит в том, что излучение мощного лазерного импульса фемтосекундной длительности возбуждает электроны в приповерхностном слое металлического образца, которые, приобретая энергию, большую работы выхода из металла, вылетают из образца и создают облако свободных зарядов вблизи его поверхности. Если плотность зарядов в этом облаке достаточно высока, то электронный пучок микроскопа, проходя через него, претерпевает изменения под действием кулоновских сил, что сказывается на изображении пучка, возникающем в плоскости регистрации микроскопа. По мере разлета облака зарядов плотности его снижается и изображение электронного пучка на детекторе возвращается к исходному виду.

Следует отметить, что этот эффект можно использовать для сведения по времени ультракоротких лазерных и электронных пучков в экспериментах, проводимых по методу «накачка–зондирование» [9, 18, 19]. В этих экспериментах, как правило, энергия кванта излучения значительно меньше работы выхода электронов из металла, в связи с чем используется многоквантовое возбуждение электронов, для осуществления которого требуются значительные интенсивности и плотности энергии за импульс излучения на поверхности образца ( $\sim 10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup> и  $\sim 10$  мДж/см<sup>2</sup> соответственно). Типичные параметры фемтосекундных лазеров, с которыми проводятся такие исследования (энергия в импульсе  $\sim 1$  мДж и его длительность менее 100 фс), позволяют после фокусировки на образце получать необходимые параметры излучения в достаточно большом (диаметром 200–500 мкм) пятне.

Нами использовался волоконный фемтосекундный лазер со значительно меньшей энергией в импульсе ( $\sim 1.6$  мкДж) и большей длительностью лазерного импульса ( $\sim 300$  фс). Поэтому для достижения необходимых параметров излучения следовало осуществлять его фокусировку в значительно меньшее ( $\sim 50$  мкм) пятно на образце.

Конструкция образца, используемого в эксперименте, схематично изображена на рис.5. Образец представлял собой цилиндр (отрезок свежеполированного медного провода) диаметром 500 мкм и длиной 3 мм, который закреплялся в углу, образованном пересечением вертикальной и горизонтальной поверхностей из тонкой медной фольги. В поверхностях, образующих угол, сделаны сосновые щели шириной 100 мкм, облегчающие пространственное сведение электронного и лазерных лучей на образце. Образец (вместе с поверхностями) размещался в узле держателя образцов микроскопа, который позволял осуществлять прецизионное двухкоординатное перемещение в горизонтальной плоскости.

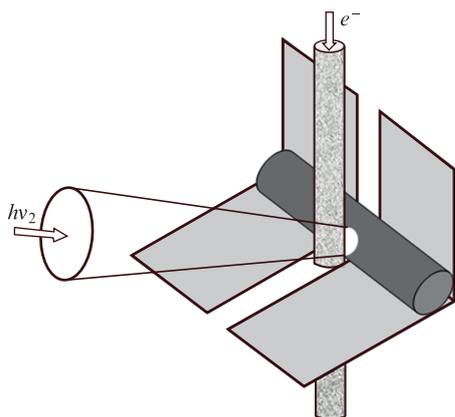


Рис.5. Конструкция образца, используемого в эксперименте (см. текст).

Излучение фокусировалось на образец с помощью кварцевой линзы с фокусным расстоянием 20 см, диаметр пятна сфокусированного лазерного пучка равнялся  $\sim 50$  мкм. Диаметр электронного пучка в области образца, измеренный нами путём сканирования поперечного сечения пучка с помощью лезвия, составлял  $\sim 30$  мкм.

В проводимом эксперименте микроскоп переключался в режим дифракции. Электронный пучок, прошедший через область размещения образца, фокусировался на регистрирующую поверхность. Система регистрации позволяла наблюдать эволюцию электронного пучка в различных частях его изображения.

Излучение фемтосекундного волоконного лазера на длине волны 1050 нм (мощность 820 мВт) последовательно преобразовывалось с помощью нелинейных кристаллов во вторую и четвертую гармоники. После их разделения излучение четвертой гармоники (262.5 нм) использовалось для генерации импульсного электронного пучка в микроскопе, а излучение второй гармоники (525 нм) задерживалось с помощью управляемой компьютером моторизованной оптической линии задержки и использовалось для возбуждения образца. С помощью оптического затвора на выходе волоконного лазера частота следования лазерных импульсов могла изменяться от 500 кГц до 250 Гц. Изменение частоты следования импульсов позволяло обеспечить оптимальные условия накопления сигнала, сохраняя при этом интенсивность и плотность энергии импульса излучения на поверхности образца на максимально возможном уровне.

Для увеличения отношения сигнал/шум осуществлялось усреднение по нескольким прилегающим пикселям системы регистрации изображения и накопление сигнала по времени. Типичное значение усредненного сигнала в максимуме яркости изображения электронного пучка составляло  $\sim 10^4$  электронов в точке изображения при времени накопления 1 с. Изменяя длину линии задержки, можно было в стробоскопическом режиме регистрировать динамику влияющих на электронный пучок микроскопа процессов, возникающих в образце под действием возбуждающих лазерных импульсов. Время снятия одной зависимости составляло обычно  $\sim 10$  мин.

### 3. Результаты и их обсуждение

На рис.6 представлена зависимость яркости изображения  $S$  центральной части электронного пучка от време-

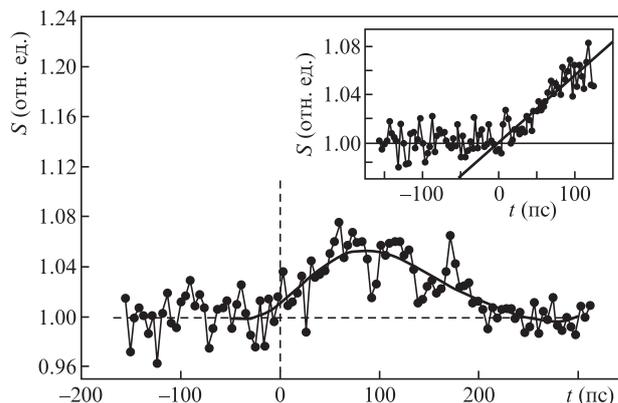


Рис.6. Зависимость яркости  $S$  в средней части изображения электронного пучка микроскопа от времени задержки  $t$  между воздействующим на образец лазерным импульсом и зондирующим электронным импульсом. На вставке приведена зависимость сигнала  $S$  на начальной стадии эволюции электронного пучка. Время накопления сигнала в каждой точке 4 с, сплошная кривая — полиномиальная аппроксимация.

ни задержки  $t$  между воздействующим на образец лазерным импульсом и зондирующим электронным импульсом. Интенсивность и плотность энергии излучения в сфокусированном пятне на образце составляли  $\sim 2 \times 10^{10}$  Вт/см<sup>2</sup> и  $\sim 5$  мДж/см<sup>2</sup> соответственно. На рисунке положительные значения времени задержки соответствуют случаю, когда зондирующий импульс приходит в область образца позже возбуждающего, а отрицательные — наоборот, когда возбуждающий импульс приходит позже зондирующего. Видно, что плотность электронного пучка сначала увеличивается в течение  $\sim 100$  пс под действием формирующегося вблизи поверхности образца облака зарядов (изображение проходящего через него электронного пучка слегка поджимается), а затем становится прежней.

Важным параметром в исследованиях по методу «накачка–зондирование» является так называемая нулевая точка на шкале задержек, т. е. задержка, при которой возбуждающие и зондирующие пучки приходят в область образца одновременно. В случае зондирования исследуемого образца фотоэлектронами методом динамической электронной микроскопии задержка по времени между возбуждающим лазерным импульсом и диагностирующим электронным импульсом включает в себя время пролёта фотоэлектронов от поверхности фотокатода до образца. В процессе самой фотоэмиссии электронов с фотокатода задержка по времени находится в аттосекундной области [1], и при проведении исследований с пико- и фемтосекундным разрешением ею можно пренебречь.

На вставке рис.6 представлена полученная в отдельном эксперименте более детальная зависимость сигнала  $S$  на начальной стадии эволюции электронного пучка.

Для анализа полученных экспериментальных зависимостей воспользуемся следующими соображениями. Под действием мощных фемтосекундных лазерных импульсов металлическая мишень эмитирует фотоэлектроны с кинетической энергией (в первом приближении)

$$m_e v_t^2 / 2 = 2\hbar\omega - W_{Cu}, \quad (4)$$

где  $\hbar\omega$  — энергия кванта с длиной волны 525 нм;  $v_t$  — начальная скорость фотоэлектронов;  $W_{Cu} \approx 4.3$  эВ [13] — ра-

бота выхода электронов из медной мишени. Эмитированные из медной мишени электроны пересекают область взаимодействия с зондирующим фотоэлектронным пучком с энергией 75 кэВ за характерное время

$$\tau_{tr} \approx \frac{d}{v_1}, \quad (5)$$

где  $d$  – поперечный размер фотоэлектронного пучка. Оценивая из ширины контура изменения сигнала по полувысоте (рис.6) длительность времени пролета примерно в 100 пс, получаем с учётом формул (4) и (5)  $d \approx 39$  мкм. Отметим, что найденное значение хорошо совпадает с измеренным диаметром фотоэлектронного пучка в колонне электронного микроскопа.

Согласно модели, часто используемой в сверхбыстрой электронографии (см., напр., [9]), нулевая точка отсчёта  $t_0$ , соответствующая началу пространственно-временного перекрытия возбуждающего лазерного и зондирующего фотоэлектронного импульсов в области образца, определяется как точка пересечения двух прямых линий, одна из которых соответствует плато, а другая – фронту изменения сигнала:

$$S_{\text{plato}} = x_1 + x_2 t, \quad (6.1)$$

$$S_{\text{front}} = x_3 + x_4 t, \quad (6.2)$$

$$t_0 = f = \frac{x_1 - x_3}{x_4 - x_2}. \quad (6.3)$$

Анализируя экспериментальные данные, представленные на вставке рис.6, получаем  $x_1 \approx 1.001 \pm 0.003$ ,  $x_2 \approx 2 \times 10^{-6} \pm 3 \times 10^{-5} \text{ пс}^{-1}$ ,  $x_3 \approx 1 \pm 0.005$ ,  $x_4 \approx 5.6 \times 10^{-4} \pm 6 \times 10^{-5} \text{ пс}^{-1}$ . Положение нулевой точки на временной шкале «размыто» на величину длительности фотоэлектронных импульсов. В рамках этого формализма неопределённость  $\Delta t_0$  нахождения нулевой точки можно записать в следующем виде:

$$\Delta t_0 = \sqrt{\sum \left( \frac{\partial f}{\partial x_i} \Delta x_i \right)^2}. \quad (7)$$

Проведя вычисления с использованием выражений (6.3) и (7), получим  $\Delta t_0 \approx 10.5$  пс, что близко к оценке длительности самого зондирующего электронного импульса.

#### 4. Заключение

Применение современной импульсной лазерной техники позволило создать источник фотоэлектронного пучка ультракороткой длительности, который может быть использован в просвечивающем электронном микроскопе для наблюдения быстропротекающих процессов, инициируемых в твёрдом теле фемтосекундным лазерным излучением. В рамках решения этой задачи на основе прибора Hitachi H-300 создан 4D микроскоп, работающий в режиме сверхбыстрой электронной микроскопии и дифракции. При использовании фемтосекундного волоконного лазера для генерации фотоэлектронов получены им-

пульсные электронные пучки диаметром  $\sim 30$  мкм, которые содержат в каждом импульсе  $\sim 300$  электронов. При таких параметрах длительность зондирующего электронного импульса в микроскопе, по нашим оценкам, составляет менее 7 пс, а его продольная длина – менее 1 мм. Заметим, что при одном и том же среднем токе в колонне электронного микроскопа в импульсном фотоэлектронном режиме концентрация электронов в зондирующем пучке возрастает примерно в  $10^7$  раз по сравнению с непрерывным термоэмиссионным режимом.

На созданном приборе выполнены эксперименты по исследованию кулоновского взаимодействия фотоэлектронного пучка с энергией 75 кэВ с облаком электронов, испущенных медной мишенью под действием мощных фемтосекундных лазерных импульсов. С помощью позиционно-чувствительного детектора визуализирована трансформация изображения быстрого фотоэлектронного пучка, испытавшего кулоновское взаимодействие с облаком электронов. На основе наблюдаемого эффекта реализован метод определения нулевой точки отсчёта регистрации изображения и дифракционной картины, в которой возбуждающие образец и зондирующие импульсы перекрываются не только в пространстве, но и во времени.

Полученные результаты демонстрируют возможность исследования структурной динамики различных материалов, в том числе материалов фотоники [20], методом сверхбыстрой просвечивающей электронной микроскопии и дифракции в пикосекундном временном диапазоне.

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки России (проект № RFMEFI61316X0054).

- Ищенко А.А., Гиричев Г.В., Тарасов Ю.И. *Дифракция электронов: структура и динамика свободных молекул и конденсированного состояния вещества* (М: Физматлит, 2013).
- Зевайль А., Томас Дж. *Трёхмерная электронная микроскопия в реальном времени* (Долгопрудный: Интеллект, 2013).
- Ischenko A.A., Aseyev S.A. *Time Resolved Electron Diffraction: For Chemistry, Biology and Material Science* (New York: Elsevier, 2014).
- Ищенко А.А., Асеев С.А., Баграташвили В.Н., Панченко В.Я., Рябов Е.А. *УФН*, **184**, 681 (2014).
- Baskin J.S., Zewail A.H. *Compt. Rend. Phys.*, **15**, 176 (2014).
- Miller R.J.D. *Ann. Rev. Phys. Chem.*, **65**, 583 (2014).
- Щелев М.Я. *УФН*, **182**, 649 (2012).
- Миронов Б.Н., Компанец В.О., Асеев С.А., Ищенко А.А., Мисочко О.В., Чекалин С.В., Рябов Е.А. *Письма ЖЭТФ*, **103**, 597 (2016).
- Badali D.S., Gengler R.Y.N., Miller R.J.D. *Struct. Dyn.*, **3**, 034302 (2016).
- Лебедев М.В., Мисочко О.В., Декорси Т., Георгиев Н. *ЖЭТФ*, **127**, 308 (2005).
- Antonova K.A., Makarov A.A. *Laser Phys.*, **21**, 112 (2011).
- Model H-300 Electron Microscope, Instruction Manual* (Japan, Tokyo: Hitachi LTD, 1980).
- Srinivasan-Rao T., Fischer J., Tsang T. *J. Appl. Phys.*, **69**, 3291 (1991).
- Srinivasan R., Lobastov V.A., Ruan C.Y., Zewail A.H. *Helv. Chim. Acta*, **86**, 1761 (2003).
- Sciaini G., Miller R.J.D. *Rep. Progr. Phys.*, **74**, 096101 (2011).
- Qian B-L., Elsayed-Ali H.E. *J. Appl. Phys.*, **91**, 462 (2002).
- Siwick B.J., Dwyer J.R., Jordan R.E., Miller R.J.D. *J. Appl. Phys.*, **92**, 1643 (2002).
- Dolocan A., Hengsberger M., Neff H.J., Barry M., Cirelli C., Greber T., Osterwalder J. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **45**, 285 (2006).
- Park H., Hao Z., Wang X., Nie S., Clinite R., Cao J. *Rev. Sci. Instrum.*, **76**, 083905 (2005).
- Barwick B., Zewail A.H. *ACS Photon.*, **2** (10), 1391 (2015).