

ДИНАМИКА РЕШЕТКИ И ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ

УДК 548.0539.27

ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ, ИНДУЦИРОВАННЫХ ФЕМТОСЕКУНДНЫМ ЛАЗЕРНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ В ТОНКИХ ПЛЕНКАХ И МОЛЕКУЛЯРНО-КЛАСТЕРНЫХ ПУЧКАХ, МЕТОДАМИ СВЕРХБЫСТРОЙ ЭЛЕКТРОННОЙ ДИФРАКЦИИ

© 2022 г. С. А. Асеев^{1,*}, А. А. Ищенко², В. О. Компанец¹, И. В. Кочкиков³, А. Л. Малиновский¹,
Б. Н. Миронов¹, Д. Г. Пойдашев¹, С. В. Чекалин¹, Е. А. Рябов^{1,**}

¹Институт спектроскопии РАН, Москва, Троицк, Россия

²Российский технологический университет, Институт тонких химических технологий им. М.В. Ломоносова,
Москва, Россия

³Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, физический факультет, Москва, Россия

*E-mail: isanfemto@ya.ru

**E-mail: ryabov@isan.troitsk.ru

Поступила в редакцию 05.12.2020 г.

После доработки 05.12.2020 г.

Принята к публикации 25.01.2021 г.

Когерентная динамика решетки в тонких кристаллических пленках сурьмы и висмута исследована методом сверхбыстрой электронной дифракции, когда образец возбуждался излучением Ti:sapphire фемтосекундного лазера, а зондировался с помощью ультракоротких электронных импульсов. За-регистрированная генерация когерентных оптических фононов в кристаллах отвечала модам A_{1g} и E_g и их комбинациям в Sb, а также проявлению A_{1g} -моды и ее первого и второго обертонов в Bi. Детектирование оптических фононов с частотами до 9 ТГц свидетельствовало о достигнутом временном разрешении на уровне ~ 100 фс. На основе фемтосекундного источника электронов создан сверхбыстрый электронограф для исследования нелинейных лазерно-индуцированных процессов в молекулярных и кластерных пучках.

DOI: 10.31857/S0023476122020023

ВВЕДЕНИЕ

Закономерности структурной динамики материи (от молекул до кластеров и кристаллических структур) являются принципиально важным предметом современного естествознания [1–7]. Метод сверхбыстрой электронной дифракции (СЭД), основанный на использовании фемтосекундных лазеров для возбуждения быстропротекающих процессов в исследуемом образце и формирования синхронного зондирующего импульсного электронного пучка ультракороткой длительности в результате процесса фотоэмиссии, открыл возможность детектирования когерентной структурной динамики вещества с высоким пространственно-временным разрешением [1–7]. В отличие от чисто оптических методов фемтосекундной лазерной спектроскопии использование ультракоротких электронных импульсов для зондирования позволяет получить прямую информацию о структурной динамике непосредственно из

зависящей от времени дифракционной картины. При таком подходе субатомное пространственное разрешение обеспечивается за счет электронной дифракции. Временное разрешение метода СЭД ограничено длительностью зондирующих возбужденный образец электронных импульсов. Если вблизи фотокатода длительность фотоэлектронного импульса определяется лазерным импульсом, то при его распространении кулоновское расталкивание может приводить к расплыванию на величину $\sim 10^{-13} - 10^{-12}$ с [8]. Уменьшение траектории фотоэлектронов от катода до образца в компактном исполнении прибора позволяет достичь субпикосекундного временного разрешения [9], что оказывается достаточным для детектирования широкого класса оптических фононов с терагерцовыми частотами в различных кристаллах.

Висмут и сурьма (в случае объемных материалов относятся к полуметаллам) характеризуются ромбоэдрической структурой $A7$ с двумя атомами

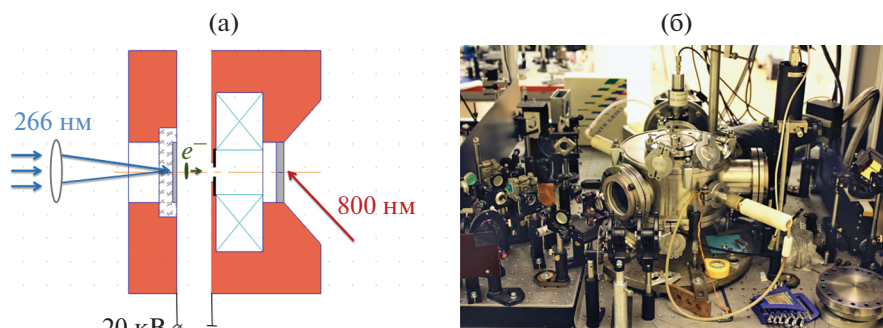


Рис. 1. Основные элементы (фотокатод, анод, магнитная линза и образец) (а) и фотография (б) сверхбыстрого электронографа для детектирования быстропротекающих лазерно-индуцированных процессов в тонких кристаллических пленках.

в элементарной ячейке [10]. Для сверхбыстрой лазерной спектроскопии эти материалы являются модельными объектами, в которых исследуется генерация когерентных фононов под действием мощных лазерных импульсов ультракороткой длительности [11–16]. В данной статье основное внимание уделено экспериментальным данным, полученным с помощью метода СЭД.

В качестве образцов выбраны пленки кристаллов Sb и Bi толщиной 20–30 нм, “прозрачные” для электронного пучка с энергией 20 кэВ. Наблюдение высокочастотных оптических фононов потребовало высокого временного разрешения от канала зондирования, что было продемонстрировано в эксперименте.

Метод СЭД открывает новые возможности и для исследования сверхбыстрых лазерно-индуцированных процессов в пучках молекул и кластеров, получаемых при сверхзвуковом истечении газа в вакуум. Представлен разработанный вариант компактного электронографа для решения этого комплекса задач. Получены первые результаты.

СВЕРХБЫСТРАЯ ЭЛЕКТРОНОГРАФИЯ БЫСТРОПРОТЕКАЮЩИХ ЛАЗЕРНО- ИНДУЦИРОВАННЫХ ПРОЦЕССОВ В ТОНКИХ КРИСТАЛЛАХ

Схема компактного прибора, реализующего метод СЭД, приведена на рис. 1 [9, 17]. Для детектирования сверхбыстрой структурной динамики здесь применяется подход “pump-probe”, когда один достаточно короткий импульс возбуждает вещество образца, а другой, посылаемый с регулируемой задержкой t относительно первого, осуществляет зондирование возбужденной мишени. Для накопления сигнала эта процедура может повторяться много раз, после чего измерения продолжают уже при другой задержке t .

В рассматриваемом случае в качестве возбуждения (накачки — “pump”) использована основная частота фемтосекундного Ti:sapphire лазера с длиной волны 800 нм и длительностью лазерных импульсов около 50 фс при частоте их повторения 1 кГц. Зондирование (“probe”) осуществляется импульсным фотоэлектронным пучком, формируемым за счет фотоэффекта при облучении фотокатода (30 нм золота на кварцевой пластине) III гармоникой на длине волны 266 нм от того же Ti:sapphire лазера, что обеспечивает прецизионную синхронизацию оптического и фотоэлектронного импульсов в эксперименте.

В качестве кристаллических образцов методом термического напыления были подготовлены тонкие (20–30 нм) пленки Sb и Bi на углеродной подложке, применяемой в классической просвечивающей электронной микроскопии. Полученный образец устанавливался в вакуумную камеру электронографа, где он облучался под углом 45° слабо-сфокусированным линейно поляризованным фемтосекундным лазерным излучением с плотностью энергии в импульсе 1–2 мДж/см². Зондирующий мишень импульсный фотоэлектронный пучок с кинетической энергией 20 кэВ содержал порядка 1000 электронов в каждом импульсе. Электронный пучок диаметром около 100 мкм в области образца формировался линзой на основе постоянного магнита, что позволило достичь предельно малого времяпролетного промежутка от катода до образца, равного 12 мм, и, соответственно, минимизировать уширение электронных импульсов на уровне нескольких сотен фемтосекунд. В эксперименте диаметр области оптического возбуждения ~ 1 мм был на порядок больше области зондирования, что позволило свести к минимуму влияние неоднородности лазерного возбуждения. Дифракционная картина, сформированная зондирующим электронным пучком, регистрировалась позиционно-чувстви-

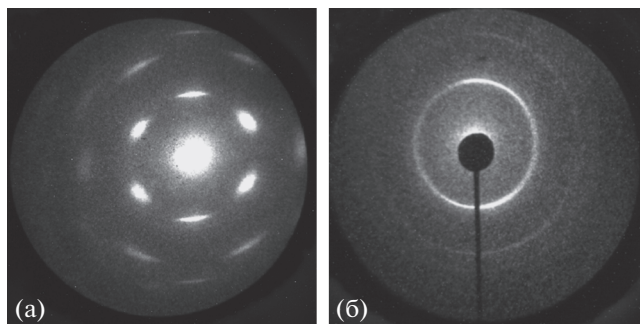


Рис. 2. Дифрактограммы тонких кристаллических пленок сурьмы (а) и висмута (б), полученные с помощью импульсного фотоэлектронного пучка фемтосекундной длительности.

тельной 2D-схемой на основе пары микроканальных пластин, люминофора и ПЗС-матрицы, соединенной с компьютером.

Электронограммы тонких кристаллических пленок Sb и Bi, полученные в отсутствие оптического возбуждения образца, представлены на рис. 2. Их структура (наличие явно выраженных рефлексов (рис. 2а) и узких колец (рис. 2б)) однозначно свидетельствует о кристаллической природе исследуемого материала. После облучения образца мощным лазерным излучением интенсивности электронограмм претерпевали изменения, которые регистрировались при разных задержках t . В процессе эксперимента задержка менялась с шагом около 60 фс в широком диапазоне на пикосекундной шкале. Время накопления сигнала при этом составляло несколько секунд.

НЕЛИНЕЙНАЯ ФОНИКА В ПЛЕНКАХ СУРЬМЫ И ВИСМУТА

При оптическом возбуждении мощным лазерным импульсом фемтосекундной длительности происходил практически мгновенный разогрев электронной подсистемы образца, что за счет электрон-фононного взаимодействия приводило к раскачке колебаний кристаллической решетки. В эксперименте появление фононов сопровождалось периодической во времени модуляцией интенсивности дифракционной картины. Из фурье-анализа зарегистрированного сигнала можно найти спектральный состав возбужденных фононов (рис. 3).

Так, для тонкого кристалла сурьмы обнаружен набор частот на 1.1, 3.4, 4.6 и 6.4 ТГц (рис. 3а), который достаточно хорошо соответствовал сценарию возбуждения оптических фононов E_g (3.5 ТГц) и A_{1g} (4.5 ТГц), а также разностного колебания $A_{1g}-E_g$, что наблюдалось в чисто оптических экспериментах [11, 12]. Частота 6.4 ТГц в Sb, отвечающая второй гармонике E_g , до [9] не наблюдалась. Ее возбуждение в сильном лазерном поле может быть отнесено к проявлению нелинейной фооники в этом материале.

Для висмута из фурье-анализа следует, что модуляция дифракционного сигнала вызвана возбуждением ансамбля мод с частотами около 3, 6 и 9 ТГц (рис. 3б). Частота ~ 3 ТГц отвечала A_{1g} оптическим фононам висмута, которые регистрировались ранее методом чисто оптического возбуждения — зондирования [13–16]. Наблюдаемые более высокочастотные моды представляют особый интерес, так как указывают на нелинейные процессы при возбуждении оптических фононов в вис-

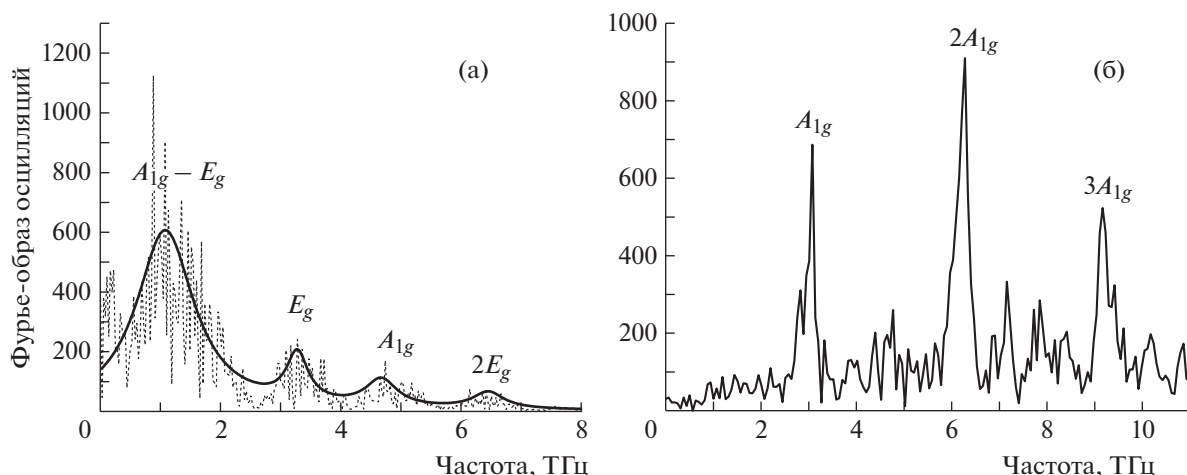


Рис. 3. Фурье-спектры лазерно-индуцированной модуляции дифракционного сигнала в тонком кристалле сурьмы (а) и висмута (б). На рис. 3а для лучшего восприятия сплошной линией представлена аппроксимация экспериментальных данных функциями Лоренца.

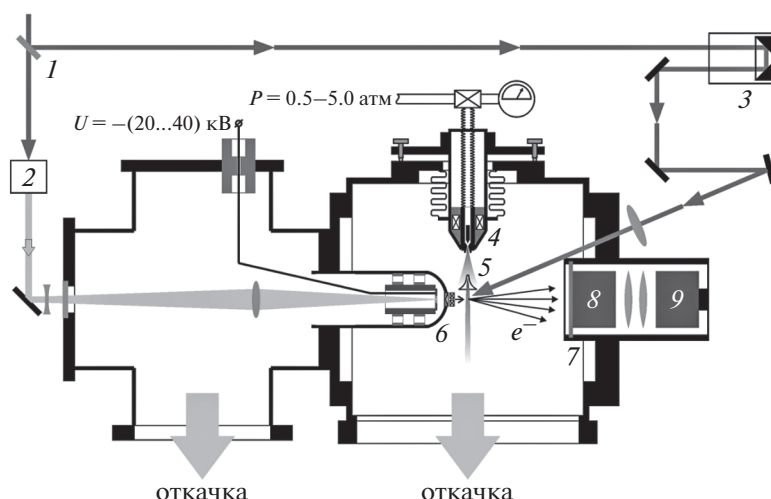


Рис. 4. Схема фемтосекундного газозафазного электронографа, состоящего из двух вакуумных камер. Слева — камера формирования электронного пучка. Справа — камера взаимодействия электронного и лазерного лучей с молекулярно-кластерным пучком; 1 — делитель исходного лазерного луча, 2 — преобразователь лазерного излучения в третью гармонику, 3 — линия задержки, 4 — узел импульсного сопла, 5 — скиммер, 6 — узел электронной пушки, 7 — фосфорный экран, 8 — усилитель яркости, 9 — ПЗС-камера.

муте, с одной стороны (нелинейная фофоника), и на высокое временное разрешение прибора (около 100 фс), с другой.

Как следует из [18], висмут характеризуется достаточно большой фермиевской длиной волны (~ 30 нм), что приводит к росту электронной температуры при фемтосекундном лазерном возбуждении тонких пленок Bi толщиной $\sim 10\text{--}40$ нм. В таких условиях мощные лазерные импульсы способны за счет электрон-фононного взаимодействия обеспечить возбуждение решеточных осцилляций с большой амплитудой, что должно сопровождаться появлением обертонов, как показано в измерениях [17]. В связи с этим отметим, что, если в чисто оптических pump-probe исследованиях висмута ранее уже детектировалась II гармоника A_{lg} -моды на частоте 6 ТГц [12], то частота в районе 9 ТГц для кристаллитов Bi , связанная с III гармоникой фононной моды A_{lg} , прежде до нашей работы [17] не наблюдалась.

Таким образом, в экспериментах с тонкими кристаллами Sb и Bi наблюдалось синхронное возбуждение высокочастотных оптических осцилляций кристаллической решетки фемтосекундным лазерным импульсом. Детектирование когерентных оптических фононов с частотами до 9 ТГц методом СЭД потребовало достаточно высокого временного разрешения на уровне 100 фс от канала зондирования. Для использованного источника импульсного электронного пучка достигнутый успех определялся двумя основными факторами.

Во-первых, это достаточно высокое электростатическое поле в ускоряющем промежутке $\sim 10^7$ В/м (но гарантировано не приводящее к электростатическому пробое), что позволило уменьшить величину времяпролетной хроматической aberrации [4, 19], связанную с начальным разбросом по энергии электронов. Во-вторых, это предельно малое расстояние от катода до образца, чуть более 10 мм, что уменьшило расплывание электронных импульсов вследствие кулоновского расталкивания. Заметим, что альтернативная возможность, заключающаяся в уменьшении числа электронов в каждом зондирующем импульсе, сопровождалась бы увеличением продолжительности эксперимента и, соответственно, могла приводить к преждевременному “выгоранию” образца под действием мощного лазерного излучения. Разработанный источник импульсного электронного пучка открыл возможность создания сверхбыстрого электронографа для исследования лазерно-индуцированных процессов в молекулярно-кластерных пучках.

РАЗРАБОТКА МЕТОДА ДЕТЕКТИРОВАНИЯ СТРУКТУРНОЙ ДИНАМИКИ В МОЛЕКУЛЯРНО-КЛАСТЕРНЫХ ПУЧКАХ НА ОСНОВЕ СЭД

Для исследования сверхбыстрой структурной динамики в молекулах и кластерах создана установка (рис. 4) с взаимно перпендикулярной геометрией распространения трех пучков (молекулярно-кластерного, формируемого при истечении из соп-

ла, возбуждающего лазерного и зондирующего электронного). Для получения субпикосекундного временного разрешения их поперечные размеры не должны превосходить 100 мкм. На основе описанной выше схемы импульсного электронного источника (рис. 1а) разработан узел электронной пушки для работы с кинетической энергией электронов до 40 кэВ.

Позиционно-чувствительный детектор включает в себя фосфорный экран и считывающую камеру, откуда сигнал передается на компьютер. Для регистрации слабого сигнала возможно использование дополнительного усилителя яркости, устанавливаемого перед камерой. В установке предусмотрена возможность изменения расстояния от образца до фосфорного экрана, визуализирующего дифракционную картину, в широком диапазоне 60–120 мм. Электронограф оборудован ПЗС-камерой Thorlabs на матрице On Semi KAI-08051, позволяющей накапливать сигнал в течение продолжительного времени – до десятков минут. Также может быть использована камера Hamamatsu OrcaFlash4 v.2 на базе КМОП-матрицы с более высокой чувствительностью и пониженным уровнем шумов, но с ограниченным временем накопления – не более 10 с. Обе считывающие камеры имеют термоэлектрическое охлаждение сенсора.

Для работы электронографа излучение от задающего Ti:sapphire фемтосекундного лазера разделялось на два канала. Один служил для облучения фотокатода на частоте III гармоники лазера, с длиной волны 266 нм (УФ-излучение), а второй – для возбуждения молекулярно-кластерного пучка. Во втором канале возможно использование излучения на длинах волн 800, 400 или 266 нм. Поперечный размер пятна УФ-излучения, сфокусированного на фотокатоде, составил величину около 60 мкм. Пучок электронов из камеры, в которой находится фотокатод, вводился в камеру источника молекулярно-кластерного пучка через диафрагму диаметром 100 мкм (выступающую в роли анода). Использование диафрагмы, которая разделяла две дифференциально откачиваемых камеры фотокатода и камеры источника молекулярных пучков, обеспечивало поддержание высокого вакуума в первой камере ($\sim 2 \times 10^{-8}$ мм рт. ст.) при рабочем давлении во второй камере вплоть до $\sim 10^{-4}$ мм рт. ст. Откачка осуществлялась турбомолекулярными насосами с производительностью 300 и 2000 л/с для первой и второй камер соответственно.

Источник молекулярно-кластерного пучка создан на основе импульсного сверхзвукового сопла (General Valve) и скиммера (Beam Dynamics). Последний предназначен для выделения центральной части пучка нужного диаметра. Преду-

смотрена возможность использования сменных выходных головок сопла с разным выходным отверстием и его профилем. Предусмотрена также возможность перемещения исследуемой зоны молекулярно-кластерного пучка относительно положения электронного и лазерного пучков. Отметим, что описанная двухкамерная конструкция электронографа (рис. 4) обеспечивала возможность работы сопла в импульсном режиме с частотой повторения до 200 Гц.

Одним из ключевых моментов при проведении время-разрешенных экспериментов на газофазном электронографе является пространственно-временное совмещение трех пучков (лазерного излучения, пучка электронов и молекулярного пучка). При измерениях сначала проводилась настройка положения сопла на максимум интенсивности дифракционной картины, что соответствовало максимуму концентрации частиц, имеющему место на оси пучка. Для временной синхронизации сфокусированное лазерное излучение на длине волны 266 нм производило ионизацию молекулярного пучка (например, молекул SF_6 или CF_3I). При правильно выбранной задержке между лазерным импульсом, ионизирующим газ в пучке, и импульсом электронов образующаяся в каустике лазерного излучения плазма заметно возмущала пучок электронов, что визуализировалось на позиционно-чувствительном детекторе и, тем самым, давало нулевую точку отсчета при проведении “pump-probe” экспериментов.

Тестовые эксперименты по наблюдению электронной дифракции от молекул были проведены с молекулами SF_6 (содержание основного вещества >95%) и CF_3I (P&M Invest, 99.1%). Для этого использован непрерывный режим работы сопла диаметром 55 мкм при давлении газа над соплом 150–200 кПа. Полученные электронограммы (рис. 5) содержали характерную для этих молекул модуляцию интенсивности рассеяния электронов, а расположение дифракционных колец соответствовало данным [20] для SF_6 и [21] для CF_3I .

Разрешение в обратном пространстве является ключевым параметром сверхбыстрого электронографа. В отличие от наблюдения электронной дифракции с помощью непрерывного электронного пучка кулоновское расталкивание в плотных электронных импульсах приводит к уменьшению разрешающей способности прибора. Измерения с тонкопленочным образцом MoS_2 , помещенным в точку зондирования молекулярной струи пучком электронов (в качестве образца для калибровки) при энергии электронов 22.5 кэВ, продемонстрировали разрешение около $0.1 \text{ \AA}^{-1}$, что позволяет уверенно различать относительно ши-

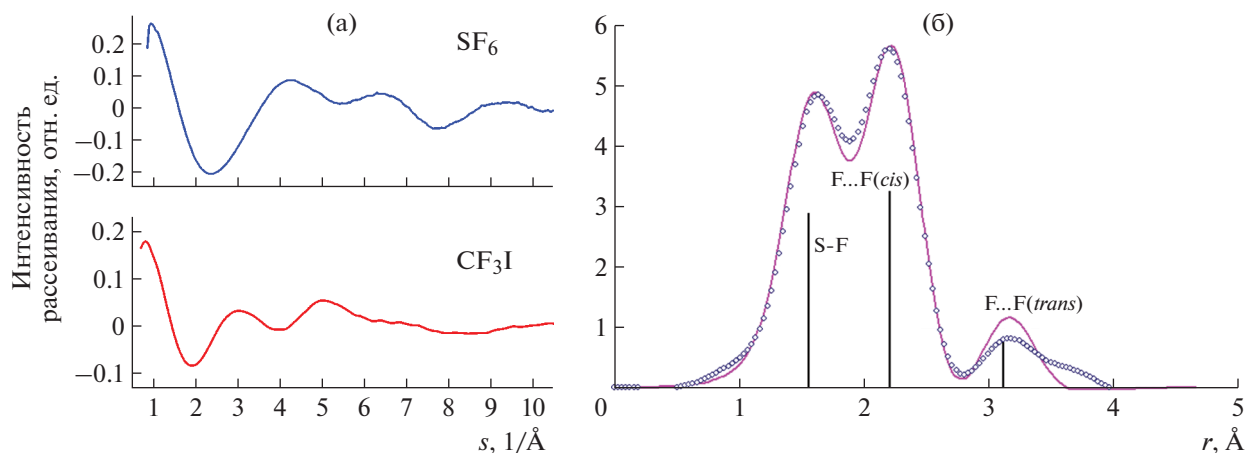


Рис. 5. Дифракционные картины от молекул SF_6 и CF_3I (а), нормированные на атомное рассеяние. По оси абсцисс – параметр рассеяния $s = (4\pi/\lambda_{dB})\sin(\theta/2)$, где λ_{dB} – длина волны электронов, а θ – угол рассеяния. Экспериментальная и рассчитанная (сплошная линия) кривые радиального распределения $F(r)$ молекулы SF_6 в относительных единицах (б).

рокие, характерные для молекулярного рассеяния, кольца на дифракционных картинах (рис. 5).

На рис. 6 показаны экспериментальная и рассчитанная кривые радиального распределения молекулы CF_3I . Приведенные кривые рассчитаны на основе известной структуры молекулы [21]; обратная задача восстановления параметров не решалась ввиду сильной корреляции параметров при небольшой длине интервала по шкале s и довольно высоком уровне шума.

В тестовом эксперименте образование кластеров при непрерывном истечении из сопла с диаметром отверстия 55 мкм получено для Ar

(99.995%) и Xe (99.9989%) при давлениях над соплом 400 и 300 кПа соответственно. Радиальные профили интенсивности для сечения дифрактограмм (после нормирования на соответствующее атомарное рассеяние) показаны на рис. 7.

Верхняя часть рис. 7 отчетливо демонстрирует несинусоидальный характер поведения кривой рассеяния, что свидетельствует о присутствии в пучке кластеров $(\text{Xe})_n$ и $(\text{Ar})_n$ с достаточно большим числом атомов n . По полученным оценкам для данного диаметра сопла при использованных давлениях газа число $n < 100$.

Для анализа интенсивностей рассеяния электронов, предположительно отражающих кластерные структуры Ar и Xe, были проведены расчеты интенсивности рассеяния для небольших икосаэдрических кластеров в соответствии с [22]. В силу предварительного характера исследования более сложные полиикосаэдрические структуры, описанные в этой и последующих работах тех же авторов, не рассматривались.

В качестве расстояния между ближайшими атомами аргона и ксенона приняты расстояния, полученные для Ar_2 и Xe_2 в [23], а именно 3.7565 и 4.3627 Å соответственно. В принятой структуре кластера ксенона присутствует 30 расстояний 4.36 Å, 30 расстояний 7.06 Å и 6 расстояний 8.30 Å. Кривая радиального распределения для ксенона (нижняя часть рис. 7), рассчитанная при таких параметрах (с демпфированием кривой $sM(s)$ выше 5 Å^{-1}), показывает хорошее согласие с экспериментально измеренной кривой.

Для достижения субпикосекундного временного разрешения в этом случае, что принципи-

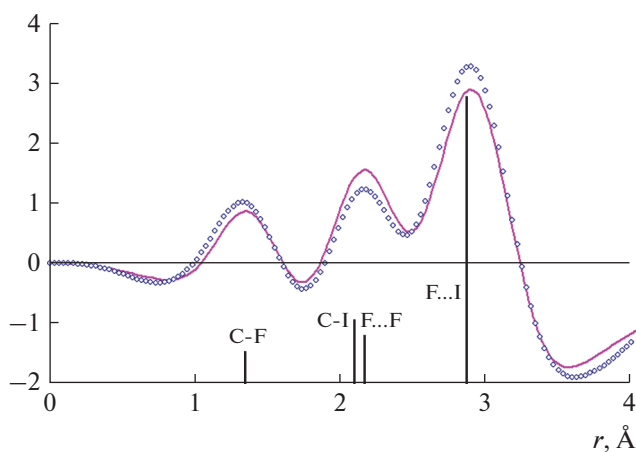


Рис. 6. Экспериментальная и рассчитанная (сплошная линия) кривые радиального распределения $F(r)$ молекулы CF_3I в относительных единицах.

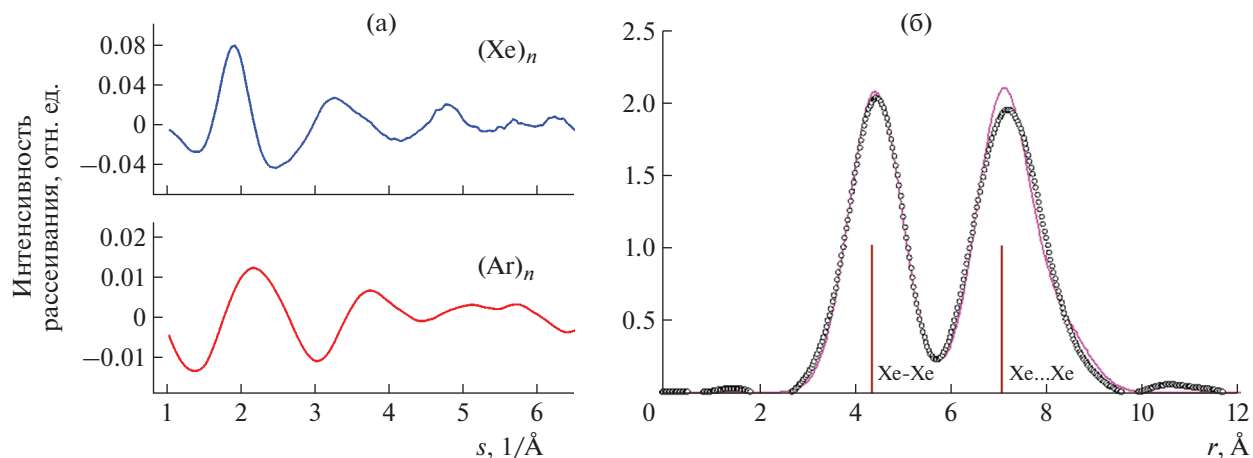


Рис. 7. Дифракционные картины от малых кластеров $(\text{Xe})_n$ и $(\text{Ar})_n$; по оси абсцисс — параметр рассеяния s (а). Экспериментальная и рассчитанная (сплошная линия) кривые радиального распределения $F(r)$ для малых кластеров ксенона в относительных единицах (б).

ально возможно с данным источником ультракоротких электронных импульсов, эксперименты с кластерными пучками планируется проводить, используя скиммер из немагнитного материала (меди), ограничивающий диаметр газового пучка в рабочей области на уровне ~ 100 мкм. Использование сопла субмиллиметрового диаметра для формирования больших молекулярных кластеров потребовало осуществить переход к импульсной работе газового источника, чтобы имеющиеся в распоряжении насосы могли обеспечить требуемый вакуум. Также необходимо было исключить влияние магнитного поля, создаваемого катушкой электромагнитного клапана сопла, на прово-

димые измерения, поскольку такое “паразитное” магнитное поле оказалось способным возмущать электронный пучок. Для подавления этого возмущения использовалась защита из магнито-экранирующего материала (пермаллоя).

Цилиндр Фарадея, установленный перед детектором, позволил измерить величину импульсного фотоэлектронного тока. Он также препятствовал попаданию на фосфорный экран компоненты электронного пучка, которая не испытала рассеяния на образце. При энергии электронов 22.5 кэВ и расстоянии до детектора 120 мм блокировка “нулевого порядка” обеспечила возможность регистрировать дифракционные картины, начиная с величины $s = 0.7 \text{ \AA}^{-1}$.

Как следует из измерений фотоэлектронного тока, при максимальных плотностях энергии УФ-излучения на фотокатод, еще не приводящих к повреждению его поверхности, в установке создавалось до 10^4 электронов в каждом импульсе. В этом случае для детектирования лазерно-стимулированной структурной динамики молекулярных кластеров в широком временном диапазоне ~ 100 пс требуется несколько часов, если ограничиться детектированием сотни кадров при разных временных задержках t с временным шагом ~ 0.8 пс.

Таким образом, созданная установка открывает возможность исследования сверхбыстрых фотоиндуцированных процессов в молекулярных кластерах, происходящих на субпикосекундных и пикосекундных временах.

Таблица 1. Параметры молекулы SF_6 , полученные при уточнении в предположении октаэдрической симметрии молекулы O_h

Параметр*	r_e	r_a	$l_a, \text{ \AA}$
S—F	1.561(13)	1.568(13)	0.0422
$(\text{F}\dots\text{F})_{\text{cis}}$	2.208	2.218	0.0609
$(\text{F}\dots\text{F})_{\text{trans}}$	3.122	3.134	0.0525

* Равновесные межъядерные расстояния ($r_e, \text{ \AA}$), термически усредненные межъядерные расстояния ($r_a, \text{ \AA}$) и средние амплитуды колебаний ($l_a, \text{ \AA}$), рассчитанные для температуры 293 К, соответствующей условиям эксперимента. В скобках приведено значение стандартного отклонения $\sigma_{\text{мнк}}$. Значение межъядерного расстояния (S—F) хорошо согласуется с данными [20].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проанализированы экспериментальные возможности метода СЭД для наблюдения нелинейной фононики в тонких кристаллических пленках, инициируемой мощными лазерными импульсами фемтосекундной длительности. В экспериментах лазерное возбуждение решеточных осцилляций с большой амплитудой сопровождалось появлением обертонов, которые проявлялись как модуляции интенсивности дифракционной картины от кристаллического образца. Высокая, до 9 ТГц, зарегистрированная частота осцилляций обертонов потребовала временного разрешения на уровне 100 фс, что предъявляло особые требования к каналу зондирования быстропротекающих процессов.

С одной стороны, быстродействие прибора в “макромасштабе” определялось количеством электронов за импульс, что при плотных электронных сгустках позволяло достаточно быстро зарегистрировать лазерно-индуцированную динамику в широком временном диапазоне до “выгорания” образца в сильном лазерном поле. С другой стороны, быстродействие метода СЭД в “микромасштабе” требовало минимально возможного количества электронов в импульсе, чтобы избежать его расплывания за счет кулоновского расталкивания. В результате удалось найти компромиссное решение, заключающееся в создании компактной установки, обеспечившей требуемое быстродействие.

Разработан сверхбыстрый газофазный электронограф, открывающий возможность исследования широкого спектра лазерно-стимулированных процессов в молекулярных кластерах с высоким пространственно-временным разрешением, достаточным для прямого детектирования структуры молекулярного кластера в пространственно-временном континууме. Отметим, что задачи детектирования структурной динамики в тонких кристаллах и молекулярных кластерах имеют принципиальные различия. С одной стороны, использование газовой струи, истекающей из сопла в вакуумную камеру, кардинальным образом облегчает приготовление образца и снимает проблему “выгорания” вещества в интенсивном электромагнитном поле. С другой стороны, сравнительно низкая плотность вещества и сравнительно большие поперечные размеры, отличающиеся по порядку величин от соответствующих характеристик тонких кристаллических пленок, заметным образом затрудняют эксперименты с молекулярными кластерами. Для решения этой проблемы разработан и запущен уникальный газофазный фемтосекундный электронограф, позволяющий изучать структурную динамику кластеров и внутрикластерные лазерно-индуциро-

ванные процессы. Проведены его испытания и пробные физические эксперименты, измерены основные характеристики прибора.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 20-02-00146 А) на УНУ “Многоцелевой фемтосекундный лазерно-диагностический спектроскопический комплекс” Института спектроскопии Российской академии наук.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Zewail A.H., Thomas J.M.* 4D Electron Microscopy. Imaging in Space and Time. London: Imperial College Press, 2010, 360 p.
2. *Ищенко А.А., Баграшвили В.Н., Авилон А.С.* // Кристаллография. 2011. Т. 56. № 5. С. 805.
3. *Ischenko A.A., Aseyev S.A.* Time Resolved Electron Diffraction: for chemistry, biology and materials science. USA, San Diego: Elsevier, 2014, 274 p.
4. *Ищенко А.А., Асеев С.А., Баграшвили В.Н. и др.* // Успехи физ. наук. 2014. Т. 184. С. 681.
<https://doi.org/10.3367/UFNr.0184.201407a.0681>
5. *Ischenko A.A., Weber P.M., Miller R.J.D.* // Chem. Rev. 2017. V. 117. P. 11066.
<https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.6b00770>
6. *Aseyev S.A., Ryabov E.A., Mironov B.N., Ischenko A.A.* // Crystals. 2020. V. 10. P. 452.
<https://doi.org/10.3390/cryst10060452>
7. *Асеев С.А., Ахманов А.С., Гиричев Г.В. и др.* // Успехи физ. наук. 2020. Т. 190. С. 113.
<https://doi.org/10.3367/UFNr.2018.11.038477>
8. *Zhang L., Hoogenboom J.P., Cook B. et al.* // Struct. Dyn. 2019. V. 6. P. 051501.
<https://doi.org/10.1063/1.5117058>
9. *Миронов Б.Н., Компанец В.О., Асеев С.А. и др.* // ЖЭТФ. 2017. Т. 151. С. 494.
<https://doi.org/10.7868/S0044451017030051>
10. *Hofmann Ph.* // Prog. Surf. Sci. 2006. V. 81. P. 191.
11. *Ishioka K., Kitajima M., Misochko O.V.* // J. Appl. Phys. 2008. V. 103. P. 123505.
<https://doi.org/10.1063/1.2940130>
12. *Chekalin S.V., Melnikov A.A., Misochko O.V.* // Laser Phys. 2014. V. 24. P. 094004.
<https://doi.org/10.1088/1054-660X/24/9/094004>
13. *Мисочко О.В., Хасе М., Китажима М.* // Письма в ЖЭТФ. 2003. Т. 78. С. 85.
14. *Мельников А.А., Мисочко О.В., Чекалин С.В.* // Письма в ЖЭТФ. 2009. Т. 89. С. 148.
15. *Misochko O.V., Ishioka K., Hase M. et al.* // J. Phys.: Condens. Matter. 2006. V. 18. P. 10571.
<https://doi.org/10.1088/0953-8984/18/47/005>

16. Мисочко О.В. // ЖЭТФ. 2014. Т. 145. С. 262.
<https://doi.org/10.7868/S0044451014020072>
17. Миронов Б.Н., Асеев С.А., Иценко А.А. и др. // Квантовая электроника. 2020. Т. 50. № 3. С. 242.
<https://doi.org/10.1070/QEL17251>
18. Shin T., Wolfson J.W., Teitelbaum S.W. et al. // Phys. Rev. B. 2015. V. 92. P. 184302.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.92.184302>
19. Асеев С.А., Садков А.С., Миронов Б.Н. и др. // ЖЭТФ. 2019. Т. 155. С. 440.
<https://doi.org/10.1134/S0044451019030064>
20. Ewbank J.D., Schafer L., Ischenko A.A. // J. Mol. Struct. 2000. V. 524. P. 1.
[https://doi.org/10.1016/S0022-2860\(99\)00419-6](https://doi.org/10.1016/S0022-2860(99)00419-6)
21. Dantus M., Kim S.B., Williamson J.C. et al. // J. Phys. Chem. 1994. V. 98. P. 2782.
<https://doi.org/10.1021/j100062a011>
22. Farges J., Feraudy M.F., Raoult B. et al. // J. Chem. Phys. 1983. V. 78. P. 5067.
<https://doi.org/10.1063/1.445375>
23. Ogilvie J.F., Wang F.Y.H. // J. Mol. Struct. 1992. V. 273. P. 277.
[https://doi.org/10.1016/0022-2860\(92\)87094-C](https://doi.org/10.1016/0022-2860(92)87094-C)