

# ВЛИЯНИЕ ВРЕМЯПРОЛЕТНОЙ ХРОМАТИЧЕСКОЙ АБЕРРАЦИИ НА ДИНАМИКУ РАСПРОСТРАНЕНИЯ ИМПУЛЬСНОГО ЭЛЕКТРОННОГО ПУЧКА В СВЕРХБЫСТРОЙ ЭЛЕКТРОННОЙ МИКРОСКОПИИ: НОВАЯ СТРАТЕГИЯ ПОВЫШЕНИЯ ВРЕМЕННОГО РАЗРЕШЕНИЯ

*С. А. Асеев*<sup>a\*</sup>, *А. С. Садков*<sup>b</sup>, *Б. Н. Миронов*<sup>a</sup>,  
*А. А. Ищенко*<sup>c</sup>, *С. В. Чекалин*<sup>a</sup>, *Е. А. Рябов*<sup>a</sup>

<sup>a</sup> *Институт спектроскопии Российской академии наук  
108840, Троицк, Москва, Россия*

<sup>b</sup> *Московский физико-технический институт (государственный университет)  
141701, Долгопрудный, Московская обл., Россия*

<sup>c</sup> *Российский технологический университет — МИРЭА  
119571, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 28 августа 2018 г.,  
после переработки 28 августа 2018 г.  
Принята к публикации 4 сентября 2018 г.

Распространенная стратегия, направленная на достижение высокого временного разрешения в сверхбыстрой электронной микроскопии и дифракции, основана на использовании сильных электростатических полей в ускоряющем промежутке для формирования быстрых электронных импульсов сверхкороткой длительности. В работе исследована динамика распространения ультракоротких фотоэлектронных сгустков с учетом времяпролетной хроматической aberrации — расплывания электронных импульсов на выходе из области ускоряющего электрического поля. Представлены результаты расчета длительности фотоэлектронных импульсов с учетом кулоновского расталкивания. Согласно проведенному анализу, использование сильных электростатических полей в ускоряющем промежутке для формирования быстрых электронных импульсов сверхкороткой длительности не является необходимым условием для достижения финального высокого временного разрешения в методе сверхбыстрой электронной микроскопии. Обнаружены режимы работы ультрабыстрого просвечивающего электронного микроскопа, когда временное разрешение улучшается по мере роста времяпролетной хроматической aberrации.

DOI: 10.1134/S0044451019030064

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Сверхбыстрая электронная дифракция (UED) и сверхбыстрая электронная микроскопия (UEM) относятся к быстроразвивающимся направлениям в физике, химии, биологии, материаловедении и смежных областях [1–5]. Зондирование лазерно-индуцированных процессов в образце ультракороткими электронными сгустками в разные моменты времени относительно лазерного импульса, запускаю-

щего быстропротекающий процесс, позволяет провести исследования с высоким пространственно-временным разрешением. В результате сочетания возможностей современной импульсной лазерной техники и электронной дифракции/микроскопии, можно «записать кинофильм», в котором прослеживается динамика быстропротекающих процессов, как в пространстве, так и во времени, что представляет несомненный интерес для многих областей современного естествознания [1–5].

Импульсный пучок электронов, формируемый при облучении катода ультракоротким лазерным излучением, позволяет решить сразу две важные задачи, необходимые для успешного функционирова-

\* E-mail: isanfemto@yandex.ru

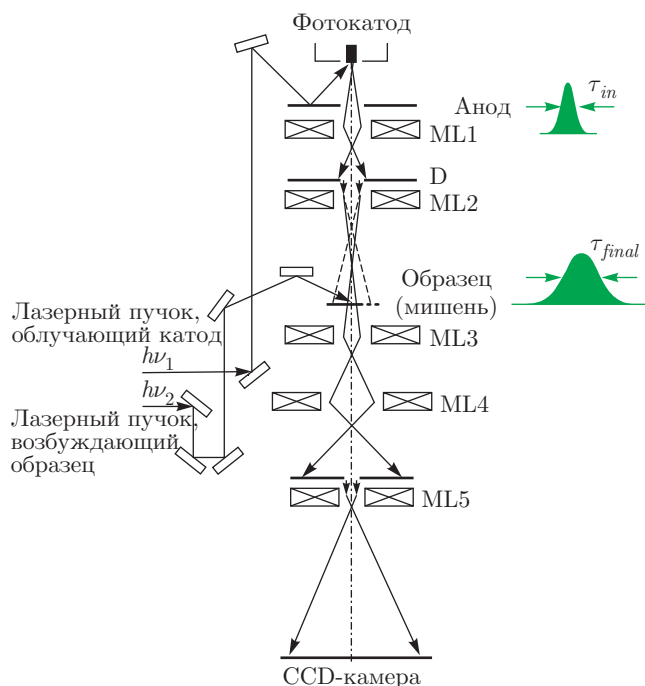
ния методов UED/UEM. Во-первых, использование единого задающего импульсного лазерного источника для облучения образца и создания фотоэлектронного пучка обеспечивает временную синхронизацию между возбуждающими образец лазерными импульсами и зондирующими эту систему электронными импульсами. При этом регулируемая временная задержка между импульсами возбуждения (канал накачки) и зондирования (канал формирования фотоэлектронного пучка) сравнительно легко достигается за счет прецизионного изменения оптических путей, отвечающих двум этим каналам. Во-вторых, фотоэффект, реализуемый с помощью фемтосекундных лазерных источников, позволяет создавать электронные импульсы достаточно малой, пико-фемтосекундной длительности [6, 7] и в результате достичь высокого временного разрешения UED/UEM.

Длительность ультракоротких фотоэлектронных импульсов в области мишени-образца,  $\tau_{final}$ , для большинства экспериментальных установок UED/UEM определяется времяпролетной хроматической aberrацией (ВХА) — расплыванием электронных сгустков при их пролете через ускоряющий промежуток (вследствие начального разброса электронов по энергии) и кулоновским расталкиванием в процессе распространения. В целях повышения временного разрешения метода образец необходимо поместить вблизи фото катода, что сложно реализовать в просвечивающем электронном микроскопе вследствие его конструктивных особенностей. Такая стратегия оказывается успешной исключительно для установок метода UED и даже без дополнительной электронной компрессии позволяет достичь  $\tau_{final} \approx 300$  фс [8–10].

Цель настоящей работы — исследовать влияние ВХА на временное разрешение метода UEM применительно к сверхбыстрому просвечивающему электронному микроскопу, а также проиллюстрировать особенности динамики распространения коротких электронных импульсов.

## 2. ОСНОВНАЯ ЧАСТЬ

Схема установки UEM представлена на рис. 1. Тонкопленочный образец облучается мощными фемтосекундными лазерными импульсами и зондируется синхронизованными электронными импульсами. Позиционно-чувствительный детектор регистрирует сигнал в режиме электронной дифракции или микроскопии при задаваемой



**Рис. 1.** Принципиальная схема сверхбыстрого просвечивающего электронного микроскопа (ML — магнитные линзы, D — диафрагма). Кулоновское расталкивание вызывает расплывание фотоэлектронных импульсов в процессе пролета дрейфовой области от анода до образца

временной задержке между возбуждающим образец оптическим и зондирующим электронными импульсами.

Начальная длительность электронных сгустков, полученных в результате фотоэмиссии, определяется энергией кванта и временными характеристиками фемтосекундного лазерного импульса, облучающего фотокаатод [7]. В процессе распространения импульсный фотоэлектронный пучок удлиняется во времени. Приведем два основных механизма.

Ускорение фотоэлектронов в статическом электрическом поле вблизи катода и формирование короткого импульсного электронного пучка вызывает удлинение каждого импульса на величину времяпролетной хроматической aberrации, которая в приближении однородного электрического поля описывается формулой Завойского — Фанченко [6, 11]:

$$\tau_{in} = \frac{\sqrt{2m_e \Delta E_{cath}}}{eF}, \quad (1)$$

где  $m_e$ ,  $e$  — масса и заряд электрона,  $\Delta E_{cath}$  — ширина распределения начальной кинетической энергии фотоэлектронов, равной разности энергии кванта и работы выхода электронов в случае линейно-

го фотоэффекта,  $F$  — напряженность электрического поля в ускоряющем промежутке. Например, для  $F \approx 3.8 \cdot 10^6$  В/м и  $\Delta E_{cath} \approx 0.4$  эВ имеем  $\tau_{in} \approx 0.6$  пс.

Следует заметить, что изменение в работе выхода фотокатода  $W_{cathode}$  меняет начальное распределение кинетической энергии фотоэлектронов и влечет за собой изменение длительности электронных импульсов после анода. Так, при вариации  $W_{cathode} \sim 0.1$  эВ, которая наблюдается для ряда металлов, используемых в качестве фотокатода в UED/UEM, даже в условиях сверхвысокого вакуума [12, 13], связанные между собой параметры  $\Delta E_{cath}$  и  $\tau_{in}$  могут изменяться на несколько десятков процентов. В разобранный выше примере это соответствует изменению  $\tau_{in}$  на величину в несколько сот фемтосекунд.

Заметим, что механизм ВХА не связан с кулоновским расталкиванием и проявляется даже при работе с одноэлектронными зондирующими импульсами, когда в эксперименте происходит накопление и усреднение сигнала. Также в выражении (1) не учитывается длительность фемтосекундных лазерных импульсов, облучающих катод, которая в этом случае существенно меньше, чем величина  $\tau_{in}$ .

Второй причиной расплывания электронных импульсов является кулоновское расталкивание, которое необходимо учитывать для многоэлектронных ступков. Плотные электронные импульсы позволяют уменьшить время эксперимента и провести измерения дифракционной картины за один импульс электронов в каждой точке временной последовательности, что является необходимым условием при исследовании ультрабыстрых необратимых процессов. В экспериментах UEM необходимо обеспечить достаточно быстрое накопление сигнала в требуемых условиях ограниченного времени работы с сильными лазерными полями, воздействующими на образец. Тогда появляется возможность выполнить измерения с большим количеством шагов, отвечающих требуемой временной последовательности импульсов, и в конечном счете повысить степень детализации исследования процесса структурной динамики объекта эксперимента.

Эти два фактора вносят основной вклад в уширение электронных импульсов для большинства современных установок UED/UEM, и на первый взгляд представляется совершенно естественным уменьшить вклад каждого из них. Проанализируем, насколько необходимо минимизировать ВХА.

Расчет влияния кулоновского взаимодействия в пучке электронов осуществлялся для электронов,

распространяющихся в колонне прибора от анода до образца (для ускоряющего промежутка этим вкладом в первом приближении можно пренебречь [14–16]). В качестве примера в настоящей работе рассмотрен сверхбыстрый просвечивающий электронный микроскоп, созданный на базе прибора Hitachi H-300 [17]. Для этой установки диаметр вытягивающей апертуры  $d = 30$  мкм, кинетическая энергия электронного пучка  $K = -eU_{acc} = 75$  кэВ, длина ускоряющего промежутка  $l_{acc} = 20$  мм, а длина электронной траектории от анода до образца  $L = 200$  мм [17]. В численном расчете в качестве начальных условий рассматривался цилиндр/эллипсоид диаметром  $d$  и длиной  $l_{in} = \tau_{in}v_e$ , где  $v_e$  — скорость распространения ускоренного электронного пучка, а величина  $\tau_{in}$  варьировалась. Предполагалось, что облако заполнено  $N$  электронами с равномерным распределением заряда; заметим, что однородно заряженный эллипсоид играет важную роль в сверхбыстрой электронной оптике [18, 19]. В нашей модели пренебрегалось действием магнитного поля и считалось, что изначально электроны покоятся в системе координат, связанной с центром масс электронного импульса.

Последнее предположение можно обосновать следующим образом. Как следует из выражения для кинетической энергии  $K = m_e v_e^2/2$ , абсолютный разброс в продольных (по отношению к распространению электронного пучка) скоростях, который в первую очередь и вызывает удлинение фотоэлектронного импульса, уменьшается при ускорении пучка электронов приблизительно как  $1/\sqrt{K}$ . Здесь прослеживается определенная аналогия с коллинеарной лазерной спектроскопией в быстрых атомарных/ионных пучках [20, 21], когда в результате «группировки по скоростям» происходит сжатие неоднородно уширенного контура линии поглощения, что обеспечивает высокую эффективность их возбуждения квазимонохроматическим лазерным излучением.

Для расчета динамики расплывания электронного импульса по мере его распространения использован метод Рунге–Кутты. Уравнение движения отдельного электрона, обозначенного индексом  $i$ , определяется из следующего выражения:

$$\frac{d^2 \mathbf{x}_i}{dt^2} = \mathbf{F} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 m_e} \sum_{n \neq i}^N \frac{\mathbf{x}_n - \mathbf{x}_i}{|\mathbf{x}_n - \mathbf{x}_i|^3}, \quad (2)$$

где  $\epsilon_0$  — диэлектрическая проницаемость вакуума,  $N$  — число электронов в импульсе.

С помощью метода Рунге–Кутты четвертого порядка динамика расплывания электронных импуль-

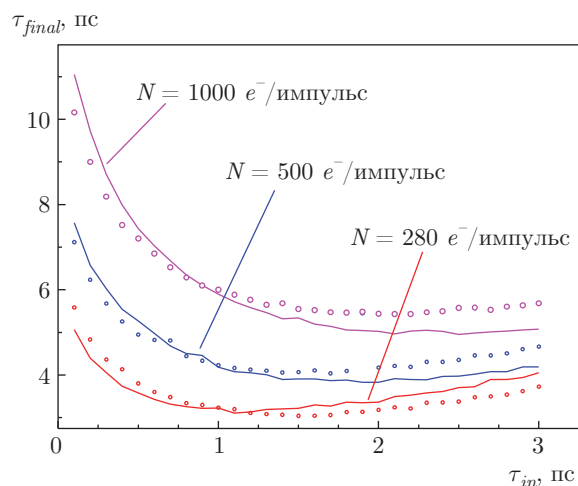


Рис. 2. Длительность фотоэлектронных сгустков в области мишени в сверхбыстром просвечивающем электронном микроскопе в зависимости от ВХА при разных количествах электронов в импульсе,  $N$ , (сплошные линии соответствуют начальному электронному импульсу в форме эллипсоида, точечные — в форме цилиндра)

сов в процессе движения от анода до образца рассчитана на компьютере с двумя шестиядерными процессорами Intel Xeon E5-2630 v2. Результаты численного расчета приведены на рис. 2. В частности, при  $\tau_{in} \approx 600$  фс и  $N = 280$  электронов в импульсе, что отвечает условиям эксперимента [17], длительность фотоэлектронного импульса в области образца достигает величины  $\tau_{final} \approx 3.8$  пс. Для сравнения заметим, что в нашей работе [17] приведена достаточно близкая оценка: приблизительно 7 пс. Различия между этими численными значениями, на наш взгляд, обусловлены отсутствием достаточно точных экспериментальных данных.

Принципиально важно отметить немонотонный характер зависимости  $\tau_{final} = f(\tau_{in})$  (рис. 2), из чего следует, что временное разрешение метода УЕМ улучшается при росте ВХА, по крайней мере, на временном интервале  $\sim 0-1$  пс. Качественно такое поведение можно проиллюстрировать на следующем примере.

Для этого рассмотрим одномерную модель распространения двухэлектронного импульса. Здесь первый, более быстрый электрон вылетает из катода с энергией  $E_1$ . Через определенный промежуток времени (50 или 100 фс) фотокатод эмитирует второй электрон с начальной кинетической энергией  $E_2 = 0$ . На рис. 3 показаны результаты анализа распывания электронных импульсов в зависимости от  $\Delta E_{cath} = E_1 - E_2$  и от  $\tau_{in}$ , определяемой с помощью

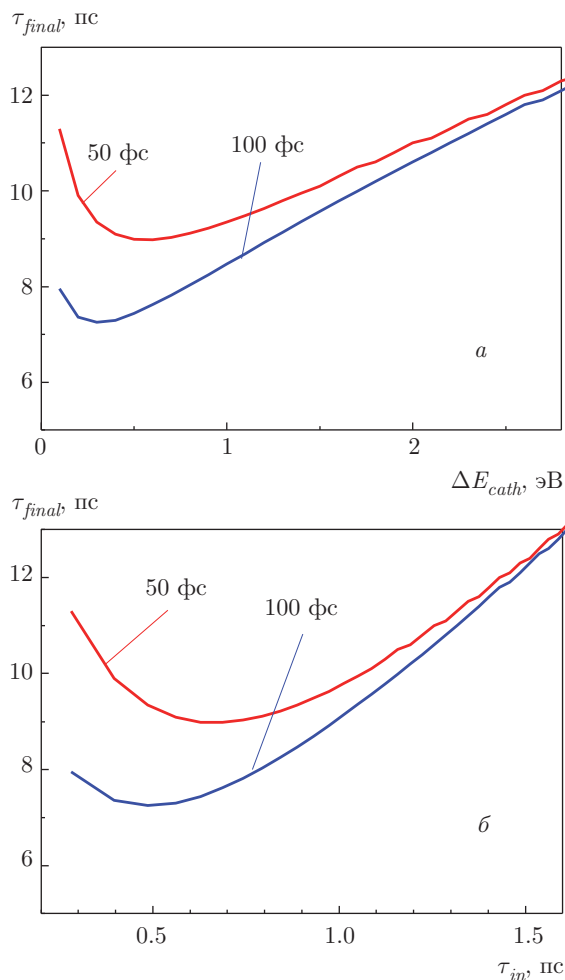


Рис. 3. Рассчитанная в рамках одномерной модели длительность двухэлектронного импульса после пролета ускоряющего промежутка и дрейфовой области в зависимости от разброса в начальной энергии электронов (а) и, соответственно, от ВХА (б) при разных задержках вылета электронов

формулы (1). Как следует из приведенных данных, наименьшая длительность  $\tau_{final}$  достигается для отличной от нуля величины  $\Delta E_{cath}$  и для ненулевой ВХА, соответственно, что качественно подтверждают сделанные ранее выводы.

Таким образом, избегая очень коротких импульсных электронных пучков на выходе из анода, можно повысить временное разрешение UED/UEM. В экспериментальном аспекте управление величиной  $\tau_{in}$  достигается как подбором ускоряющего электростатического поля, что может представлять сложности в случае просвечивающего электронного микроскопа, так и выбором материала катода и/или вариацией длины волны лазерного излучения, обеспечивающего фотоэффект.

### 3. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Бурное развитие сверхбыстрой электронной микроскопии обеспечивает широкие возможности для исследования структурной динамики веществ [1–3, 22]; при этом прогресс в этом направлении во многом обусловлен возможностью создавать плотные и вместе с тем достаточно короткие электронные импульсы для достижения высокого временного разрешения. В работе исследована динамика распространения импульсных фотоэлектронных сгустков в сверхбыстром электронном микроскопе в условиях времяпролетной хроматической aberrации. Выполнен расчет применительно к экспериментальной установке метода УЕМ, предназначенной для изучения лазерно-индуцированных процессов в веществе с помощью ультракоротких электронных импульсов в режиме просвечивающего электронного микроскопа. На примере проведенного анализа раскрыты особенности влияния времяпролетной хроматической aberrации на динамику распространения коротких фотоэлектронных импульсов, которые ранее не получили должного освещения в научной литературе.

Как известно из литературных источников (например, [23]) распространенная стратегия, направленная на достижение высокого временного разрешения в методах УЕМ/UED, основана на использовании достаточно сильных электростатических полей в ускоряющем промежутке для формирования быстрых электронных импульсов сверхкороткой длительности. Согласно проведенному нами анализу это не является необходимым условием для достижения финального высокого временного разрешения в методе УЕМ. Как продемонстрировано нашими вычислениями, учитывая немонотонный характер зависимости  $\tau_{final} = f(\tau_{in})$ , для этой цели следует обеспечить ненулевую длительность фотоэлектронных импульсов на выходе из анода.

Здесь можно выделить два преимущества подхода, заключающегося в оптимальном выборе параметра  $\tau_{in}$ . Во-первых, появляется принципиальная возможность избежать применения сверхсильных статических электрических полей в ускоряющем промежутке. Во-вторых, метод оказывается менее чувствительным к вариации работы выхода фотокатода. Это, в свою очередь, обеспечивает возможность стабильного функционирования динамического просвечивающего электронного микроскопа на продолжительном временном интервале.

В проведенном анализе ВХА вносит основной вклад в длительность фотоэлектронных импульсов

на выходе из ускоряющего промежутка, что справедливо в случае фемтосекундного лазерного излучения, но перестает выполняться, например, при использовании пикосекундных лазерных импульсов ( $\tau_{laser} \sim 10^{-12}$  с и выше), облучающих фотокатод. Тогда  $\tau_{laser} \approx \tau_{in}$  и, как следует из наших вычислений (рис. 2), в принципе, может отсутствовать однозначное соответствие между  $\tau_{final}$  и  $\tau_{laser}$ . В этой связи уместно напомнить, что еще на заре развития пико-фемтосекундной электронно-оптической хронографии на основе анализа формирования электронных сгустков в ускоряющем электростатическом поле, выполненного с учетом квантовомеханического соотношения неопределенностей, была предсказана «возможная» неоднозначность определения длительности коротких световых импульсов по сигналу на выходе электронно-оптического преобразователя [11].

В настоящей работе предполагалось, что на выходе из ускоряющего промежутка электроны характеризуются пренебрежимо малым разбросом в скоростях, продольных по отношению к распространению электронного сгустка, что справедливо лишь для очень быстрого электронного пучка ( $-eU_{acc}/\Delta E_{cath} \gg 1$ ) в пренебрежении кулоновским расталкиванием на этапе ускорения. Детальный анализ этого допущения требует отдельного рассмотрения.

Авторы выражают искреннюю благодарность И. В. Кочикову за плодотворные обсуждения.

### ЛИТЕРАТУРА

1. A. N. Zewail and J. M. Thomas, *4D Electron Microscopy: Imaging in Space and Time*, Imperial College Press, London (2010).
2. А. А. Ищенко, Г. В. Гиричев, Ю. И. Тарасов, *Дифракция электронов. Структура и динамика свободных молекул и конденсированного состояния вещества*, Физматлит, Москва (2013).
3. А. А. Ischenko and S. A. Aseyev, *Time Resolved Electron Diffraction: For Chemistry, Biology and Material Science*, Elsevier, New York (2014).
4. А. А. Ищенко, С. А. Асеев, В. Н. Баграташвили, В. Я. Панченко, Е. А. Рябов, УФН **184**, 681 (2014).
5. R. J. D. Miller, *Ann. Rev. Phys. Chem.* **65**, 583 (2014).
6. M. Y. Schelev, M. C. Richardson, and A. J. Alcock, *Appl. Phys. Lett.* **18**, 354 (1971).



7. Б. Н. Миронов, С. А. Асеев, В. Г. Миногин, С. В. Чекалин, ЖЭТФ **133**, 1155 (2008).
8. Б. Н. Миронов, В. О. Компанец, С. А. Асеев, А. А. Ищенко, О. В. Мисочко, С. В. Чекалин, Е. А. Рябов, Письма в ЖЭТФ **103**, 597 (2016).
9. D. S. Badali, R. Y. N. Gengler, and R. J. D. Miller, Struct. Dyn. **3**, 034302 (2016).
10. Б. Н. Миронов, В. О. Компанец, С. А. Асеев, А. А. Ищенко, И. В. Кочкиков, О. В. Мисочко, С. В. Чекалин, Е. А. Рябов, ЖЭТФ **151**, 494 (2017).
11. Е. К. Завойский, С. Д. Фанченко, ДАН СССР **226**, 1062 (1976).
12. W. M. H. Sachtler, G. J. H. Dorgelo, and A. A. Holscher, Surf. Sci. **5**, 221 (1966).
13. M. Chelvayohan and C. H. B. Mee, J. Phys. C: Sol. St. Phys. **15**, 2305 (1982).
14. B.-L. Qian and H. E. Elsayed-Ali, J. Appl. Phys. **91**, 462 (2002).
15. B.-L. Qian and H. E. Elsayed-Ali, J. Appl. Phys. **94**, 803 (2003).
16. Br. J. Siwick, J. R. Dwyer, R. E. Jordan, and R. J. D. Miller, J. Appl. Phys. **92**, 1643 (2002).
17. 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. Пашков, Е. А. Рябов, КЭ **47**, 116 (2017).
18. O. J. Luiten, S. B. van der Geer, M. J. de Loos, F. B. Kiewiet, and M. J. van der Wiel, Phys. Rev. Lett. **93**, 094802 (2004).
19. P. Musumeci, J. T. Moody, R. J. England, J. B. Rosenzweig, and T. Tran, Phys. Rev. Lett. **100**, 244801 (2008).
20. K.-R. Anton, S. L. Kaufman, W. Klempt, G. Moruzzi, R. Neugart, E.-W. Otten, and B. Schinzler, Phys. Rev. Lett. **40**, 642 (1978).
21. S. A. Aseyev, Yu. A. Kudryavtsev, V. S. Letokhov, and V. V. Petrunin, Opt. Lett. **16**, 514 (1991).
22. A. Adhikari, J. K. Eliason, J. Sun, R. Bose, D. J. Flannigan, and O. F. Mohammed, ACS Appl. Mater. Interfaces **9**(1), 3 (2017).
23. A. A. Petruk, K. Pichugin, and G. Sciaini, Struct. Dyn. **4**, 044005 (2017).