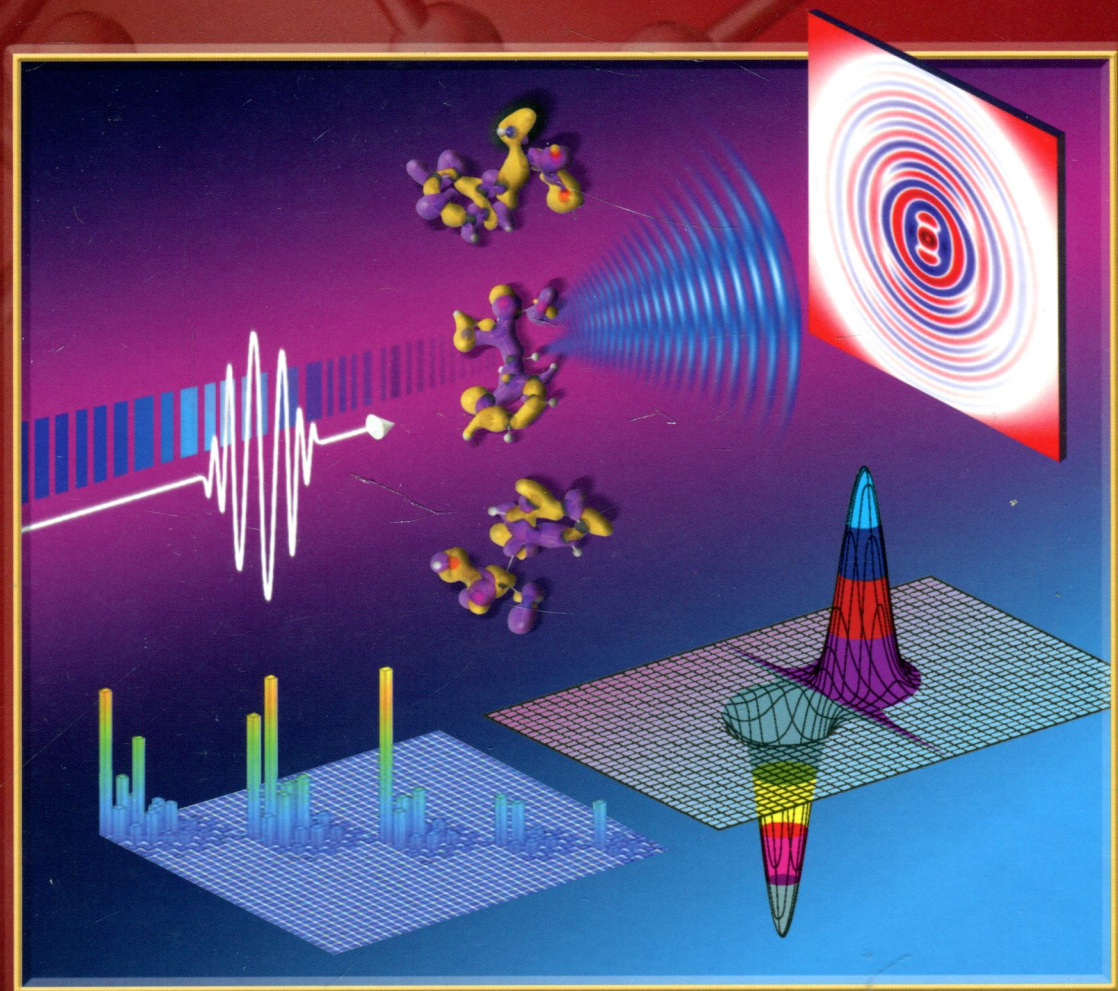


А.А. Ищенко, Г.В. Фетисов, С.А. Асеев

Методы детектирования ультрабыстрой динамики вещества



А.А.Ищенко, Г.В.Фетисов, С.А.Асеев

Методы детектирования ультрабыстрой динамики вещества



МОСКВА
ФИЗМАТЛИТ®
2022

УДК 538.913, 544.032.65,
539.261, 537.533.35
ББК 22.37, 24.51,
24.55, 22.344
М 90



Издание осуществлено при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований по проекту 21-12-00014, не подлежит продаже

Ищенко А.А., Фетисов Г.В., Асеев С.А. **Методы детектирования ультрабыстрой динамики вещества.** — М.: ФИЗМАТЛИТ, 2022. — 520 с. + цв. вкл. 56 с. — ISBN 978-5-9221-1929-0.

Монография представляет картину создания и развития методов детектирования ультрабыстрых процессов структурной динамики и содержит описание теоретических основ, принципов, техники, а также перспектив их совершенствования. Представлены достижения ультрабыстрых, включая аттосекундный диапазон, методов спектроскопии, дифракции электронов, рентгеновского излучения и электронной микроскопии для диагностики структурной динамики материи в состояниях, далеких от равновесия, и экстремальных состояниях вещества. В целом полученная информация представляет особую ценность для понимания взаимосвязи элементов триады «структура–динамика–функция». Наблюдение поведения вещества в пространственно-временном континууме исключительно важно для описания разнообразных процессов на атомно-молекулярном уровне. В перспективе это обеспечит контроль далеких от равновесия функциональных возможностей различных материалов, создание новых атомно-молекулярных технологий.

Монография рекомендуется широкому кругу читателей, интересующихся проблемами строения вещества, ультрабыстрой структурной динамики, в том числе исследования структуры и динамики наноматериалов: научным работникам, аспирантам и студентам, специализирующимся в этой увлекательной и интенсивно развивающейся области современного естествознания.

ОГЛАВЛЕНИЕ

Предисловие	8
Глава 1. Спектральные методы детектирования ультрабыстрой динамики в веществе	16
1.1. Времяразрешенная оптическая спектроскопия	19
1.1.1. Времяразрешенная люминесцентная спектроскопия	20
1.1.2. Разностная времяразрешенная спектроскопия поглощения	21
1.1.3. Времяразрешенная рамановская спектроскопия	26
1.1.4. Особенности детектирования лазерно-индуцированных ультрабыстрых процессов в атомно-молекулярных структурах	29
1.1.5. Внутримолекулярная динамика и приближение Борна–Оппенгеймера	32
1.1.6. Сверхбыстрая двумерная (2D) спектроскопия	34
1.1.7. Первичное и стимулированное фотонное эхо	40
1.1.8. Новые возможности и успехи сверхбыстрой лазерной спектроскопии	42
1.2. Аттофизика	72
1.2.1. Аттосекундная фотоэлектронная спектроскопия с угловым разрешением	80
1.2.2. Микро- и макроскопические аспекты генерации высоких гармоник и ультракоротких электромагнитных импульсов аттосекундной длительности	90
1.3. Лазерное управление молекулярными степенями свободы на пикосекундной временной шкале	99
1.3.1. Оптическая молекулярная центрифуга: практическая реализация и возможности	99
1.3.2. Оптический контроль квантовых роторов	106
Заключение	107
Список литературы к главе 1	109
Глава 2. Динамика химических реакций	116
2.1. Идентификация продуктов фотодиссоциации по сигналу TRXD при малых углах рассеяния рентгеновского излучения	116
2.2. Спектроскопическое и структурное исследование молекулярной динамики в возбужденном состоянии методами TRPES и UES	123
Заключение	134
Список литературы к главе 2	139

Глава 3. Сверхбыстрая электронная микроскопия	142
3.1. Основные экспериментальные результаты в области UED за 2018–2020 гг.	143
3.2. Отображение сверхбыстрых когерентных явлений с помощью UEM	149
3.2.1. UEM-визуализация лазерно-индуцированных фазовых переходов	150
3.2.2. UEM-визуализация электромагнитных сигналов	151
3.2.3. Объединение UEM с EELS (электронная энергетическая спектроскопия потерь)	153
3.2.4. Новые тенденции в UEM: от 4D UEM к 5D UEM и аттосекундной электронной микроскопии	154
3.2.5. Голографическое изображение электромагнитных полей с помощью электронно-световой квантовой интерференции	156
3.2.6. UEM с лазерными наноэммитерами	158
3.2.7. Сверхбыстрая микроскопия Лоренца	159
3.3. Характеризация и контроль неравновесных состояний наноструктурированных изоляторов Мотта	160
Заключение.	162
Список литературы к главе 3.	163
Глава 4. Зондирование структурной динамики ультракороткими электронными и рентгеновскими импульсами	166
4.1. Экспериментальные установки для UEC.	167
4.2. Диагностика структурной динамики конденсированного состояния	174
4.2.1. Поверхности и кристаллы	177
4.2.2. Переход графита в алмаз	178
4.2.3. Бислой кристаллической структуры двумерных жирных кислот: молекулярные ансамбли	179
4.3. Фотопереклюкающаяся система, изменяющая свойства от изолятора до металла	181
4.4. Структурная динамика неравновесных фазовых переходов	182
4.4.1. Диоксид ванадия	183
4.4.2. Сверхпроводящие купраты	183
4.5. Квантовые материалы	185
4.5.1. Структурная динамика квантовых материалов под наблюдением методов UXRC, UXRnC и рассеяния рентгеновских лучей	185
4.5.2. Управление неравновесными спиновыми состояниями на фундаментальных пространственно-временных масштабах	201
4.5.3. Развитие экспериментальных рентгеновских методов с использованием XFEL	208
4.5.4. Рентгеновское детектирование ультракоротких импульсов спинового тока в синтетических антиферромагнетиках	209
Заключение.	215
Список литературы к главе 4.	217
Глава 5. Методы сверхбыстрой электронной и рентгеновской нанокристаллографии	223
5.1. Электронная нанокристаллография с временным разрешением	225
5.2. Основные концепции	225

5.3. Подготовка образцов	227
5.4. Первичная обработка данных	229
5.5. Некоторые результаты	235
5.5.1. Плавление алюминия в жестко управляемых условиях	235
5.5.2. Фотоиндуцированные неоднородные изменения нанокристаллов золота	237
5.5.3. Наблюдение когерентных оптических фононов, возбужденных фемтосекундным лазерным излучением в нанопленках Sb	244
5.6. Рентгеновская нанокристаллография с временным разрешением	254
5.6.1. Спонтанные флуктуации и наномасштабная неоднородность	255
5.6.2. Структурная динамика материалов, перенос энергии и фазовые переходы в наномасштабе	264
5.7. Неравновесная термодинамика нанокристаллов коллоидного золота	270
Заключение	276
Список литературы к главе 5	278
Глава 6. Источники излучения и методы для ультрабыстрого рентгеноструктурного анализа	284
6.1. Классификация процессов, изучаемых дифракцией с временным разрешением	286
6.2. Основы рентгеноструктурного анализа	287
6.3. Особенности структурного анализа с временным разрешением (TRXRD)	291
6.3.1. Динамика медленных процессов — долгоживущие состояния	293
6.3.2. Короткоживущие состояния — динамика быстрых процессов в масштабе миллисекунд	295
6.4. Важнейшие характеристики инструментов для рентгеновских дифракционных исследований быстрых и сверхбыстрых процессов	297
6.4.1. Меры интенсивности излучения	298
6.5. Синхротронное излучение	300
6.5.1. Источники на базе накопительных колец	301
6.5.2. Магнитные устройства, генерирующие СИ в накопительных кольцах	304
6.5.3. Классификация источников СИ по поколениям	309
6.6. Лазеры на свободных электронах — новые источники рентгеновских лучей	315
6.6.1. Принципы действия лазеров на свободных электронах	316
6.6.2. Примеры рентгеновских ЛСЭ (XFEL)	319
6.7. Лазерно-плазменные источники РЛ	323
6.7.1. Механизмы генерации РЛ лазерной плазмой	324
6.7.2. Метод генерирования высших гармоник	326
6.7.3. Излучение горячей лазерной плазмы	327
6.7.4. Лазерно-плазменные ускорители и XFEL	328
6.8. Короткоимпульсные рентгеновские генераторы на основе ОКР	332
6.8.1. Модели рассеяния фотонов на электронах	334
6.8.2. Обратный комптон-эффект — теоретические основы	336
6.8.3. О длительности импульсов излучения из лазерно-электронных ОКР-источников и их поляризации	340

6.8.4. Примеры ОКР-источников РЛ	343
6.8.5. Комптоновские источники на основе ЛСЭ-осцилляторов	344
6.8.6. ОКР-источники РЛ на линейных ускорителях электронов	345
6.8.7. ОКР-источники РЛ на базе малых синхротронов	348
6.8.8. Лазерно-плазменные ускорители как генераторы рентгеновских лучей	350
6.8.9. ОКР-источники РЛ с лазерно-плазменным ускорением	351
6.8.10. Компактные ОКР-источники РЛ	352
6.8.11. Примеры применения ОКР-источников РЛ	356
6.9. Рентгеновские детекторы в ультрабыстрых измерениях.	359
6.10. Рентгеновские дифракционные методы изучения структурной динамики на СИ и излучениях XFEL и ОКР	361
6.10.1. Экспериментальные методы «возбуждение–измерение» (pump- probe)	361
6.10.2. Стробоскопические измерения дифрактограмм	363
6.10.2. Некоторые проблемы при стробоскопических измерениях на СИ	364
6.10.3. Дифракционные исследования с временным разрешением на ла- бораторном дифрактометре с рентгеновской трубкой	365
6.10.4. Исследование переходных состояний в кристаллах с помощью РСА на синхротронном излучении	366
6.10.5. Примеры РСА возбужденных состояний в режиме «на- качка–измерение»	367
6.10.6. Проблемы недостаточной интенсивности рентгеновского зонда при РСА с разрешением по времени	367
6.11. Рентгеновская кристаллография с разрешением по времени методом Лауэ	368
6.12. SFXC — последовательная поточная фемтосекундная рентгеновская кристаллография	370
6.12.1. Подача образцов в пучок РЛ из ЛСЭ	374
6.12.2. Анализ данных в методе SXC	375
6.12.3. Совершенствование и модификации РСА методом SXC	377
6.12.4. Модификации метода SFX до SMX	377
6.12.5. Примеры практического применения SFXC	379
Заключение.	380
Список литературы к главе 6.	381
Глава 7. Современная фемтосекундная рентгеновская нанокристалло- графия возбужденных и переходных состояний	390
7.1. Современные рентгеновские методы	392
7.1.1. Аттосекундный контроль коррелированного движения электронов	397
7.1.2. Перенос заселенности электронных состояний в схеме стимули- рованного комбинационного рассеяния с использованием аттосе- кундных импульсов мягкого рентгеновского излучения	399
7.2. Катализ и фотокатализ	404
7.2.1. На пути к пониманию фотокатализа	406
7.2.2. Интегрированные фотокаталитические системы	410

7.2.3. Методы возбуждения–зондирования при исследовании каталитических реакций	419
7.2.4. Настройка каталитического смещения газообразного водорода, производящего гидрогеназы	424
Заключение	427
Список литературы к главе 7	427
Глава 8. Визуализация структурной динамики в фемтосекундной временной области	431
8.1. Наблюдение динамики химических реакций с атомным разрешением	431
8.2. На пути к основным модам реакции	439
8.3. Элементы теории	440
8.3.1. Фотоиндуцированная динамика реакции: связь с термически активированными координатами реакции	441
8.3.2. Конические пересечения	444
8.4. Достижения в расчетах структурной динамики методами <i>ab initio</i>	447
8.5. К квантовым пределам	448
8.5.1. Томография молекулярного колебательного квантового состояния	449
8.5.2. Фотодиссоциация молекулы CS_2	453
8.5.3. Фотодиссоциация молекулы CH_3Br	454
8.5.4. Пространственно-временное разрешение для квантовой томографии и статистическая ошибка при восстановлении матрицы плотности	458
8.5.5. Расширение за пределы одномерной динамики	460
Заключение	463
Список литературы к главе 8	464
Глава 9. Комплексное использование методов исследования структурной динамики	468
9.1. Сравнительная характеристика методов сверхбыстрой дифракции электронов и рентгеновского излучения	468
9.2. Рассеяние Томсона и Резерфорда	471
9.3. Рассеяние на атомах и молекулах	473
9.4. Наблюдаемые сигналы рентгеновского и электронного рассеяния	475
9.5. Шум в сигналах рассеяния	476
9.6. Вероятность оптического возбуждения	477
9.7. Суммарные сигналы рассеяния	478
9.8. Сигналы накачки–зондирования	480
9.9. Чувствительность к атомам водорода	483
Заключение	487
Список литературы к главе 9	492
Список сокращений	497
Предметный указатель	500