

<sup>1</sup> Центр по изучению тяжёлых ионов им. Гельмгольца, Дармштадт, Германия

<sup>2</sup> Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Нур-Султан, Казахстан

<sup>3</sup> Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», Москва, Россия

## Мир коротких импульсов

### 1. Понятие времени: от каменного века до сегодняшнего дня

Миллионы лет первобытный человек определял время по движению Солнца и Луны, а эталоном времени была длина дня и ночи. Количественная концепция интервала времени - секунда, минута, час и т. д. появилась благодаря Галилео Галилею (1564 - 1642), который начал количественные измерения времени маятником. Первые оптимизированные маятниковые часы нидерландского физика Кристиана Гюйгенса (*Christiaan Huygens*, 1629 - 1695) достигли стабильности  $\Delta t \pm 10$  секунд в течение дня. Английский инженер Уильям Шорт (*William Hamilton Short*, 1881 - 1971) с точными маятниковыми часами в 1921 году достиг  $\Delta t \pm 0.003$  с, а американский физик Варен Марисон (*Warren Alvinarrison*, 1896 - 1980) в 1927 году в первых кварцевых часах добился уже  $\pm 10^{-9}$  секунд. С 70-х годов прошлого века кварцевые часы стали доступными для всех. Американский физик Харольд Лайонс (*Harold Lyons*, 1913 - 1998) в 1949 году открыл эпоху атомных часов со стабильностью времени  $\Delta t \pm 10^{-11}$  секунд.

Процессы в человеческом теле являются относительно медленными. Работа сердца соответствует частоте 60-70 ударов в секунду, а электромагнитные колебания человеческого мозга находятся в диапазоне от одного до десятков герц. В транспортных средствах со скоростями от нескольких десятков до тысячи километров в час сотая доля секунды уже существенна (при скорости 200 км/час 0.01 секунды соответствует 0.5 метра). Спутниковая навигационная связь для определения координат и расстояний требует точность  $\Delta t$ , на уровне наносекунды и меньше ( $1\text{нс} = 0.001\text{мкс} = 10^{-9}\text{с}$ ).

Другая картина - это атомный и молекулярный мир, где многие процессы происходят значительно быстрее, и не все из них мы сегодня можем измерить. Электроны проводимости в металлах перемещаются со скоростью, близкой к скорости света (около 300 тысяч километров в секунду). Возбуждение атомов и молекул происходит за фемтосекунды и быстрее ( $1\text{фс} = 10^{-15}\text{с}$ ). Описать такие процессы (координаты, скорость, энергию, время жизни и другие свойства частиц) можно только в рамках законов квантовой физики. Мир атомов и молекул имеет статистический характер, который проявляется во всех экспериментах. Возможность измерения физических величин в микромире подчиняется принципу неопределенности, сформулированному в 1927 году немецким физиком Вернером Гейзенбергом (*Werner Karl Heisenberg*, 1901-1976, Нобелевская премия в 1932 году). Принцип неопределенности утверждает, что в квантовых системах невозможно одновременно точно определить координаты ( $x, y, z$ ) и скорость ( $v_x, v_y, v_z$ ) или энергию ( $E$ ) и время жизни ( $\tau$ ) квантового состояния. Для энергии квантовой системы и времени жизни принцип неопределенности Гейзенберга приводит к формуле:  $\Delta E \times \Delta t \geq h/4\pi = 3.29 \times 10^{-16} \text{эВ} \times \text{с}$ . Это связывает точность определения энергии  $\Delta E$  с величиной  $\Delta t$  или  $\tau$ . В эту формулу входит универсальная постоянная  $h = 4.1567 \times 10^{-15} \text{эВ} \times \text{с}$ . Эту константу в 1900 году вел в физику немецкий физик Макс Планк (*Max Planck*, 1858 - 1947, Нобелевская премия в 1918 году), и она названа именем открывателя. Величина  $h$  является отношением энергии ( $\varepsilon$ ) световых квантов или фотонов к частоте ( $\nu$ ):  $h = \varepsilon / \nu$ . Планк в конце 19-го века работал над теорией теплового излучения и пришел к формуле, которая объяснила законы теплового излучения. Но эта формула предполагала, что излучение световой энергии происходит в дискретных порциях - квантах света с энергией  $\varepsilon = h\nu$ . Макс Планк был первым человеком, который предсказал и описал световые кванты (фотоны) в тепловом излучении нагретых тел и этим открыл квантовую эру в физике [1].

Принцип неопределенности Гейзенберга связан со всеми объектами квантовой физики - атомами, молекулами, ядрами атомов и элементарными частицами. Этот принцип предсказывает, что большая энергия возбуждения системы соответствует короткому времени жизни возбужденного состояния. Следует отметить, что принцип неопределенности описывает совокупность частиц и предоставляет статистическую информацию. В качестве примера рассмотрим распад радиоактивных ядер. Радиоактивный углерод  $^{14}\text{C}$  распадается в азот  $^{14}\text{N}$  и излучает электрон ( $\beta$ -лучи) с энергией  $E_\beta = 156$  кэВ. Нашим наблюдениям доступны точные данные о времени полураспада  $^{14}\text{C}$  (5730 лет) – это время, за которую распадается половина всех атомов. Но мы не знаем, когда распадается отдельный атом. Тем не менее принцип неопределенности Гейзенберга дает возможность оценить среднее время процесса распада с излучением:  $\Delta t \approx 2.65 \times 10^{-20}$  секунд!

Квантовые переходы в атомах и молекулах в видимой области спектра ( $\lambda$  от 400 до 800 нм, т.е. от 3 до 1.5 эВ) происходят за фемтосекунды, что сравнимо с импульсными лазерами (Рис.1). Согласно принципу неопределенности, квантовые переходы с небольшой полушириной  $\Delta \nu$  имеют большую величину  $\Delta t$ . При более высоких энергиях (рентгеновские и  $\gamma$  - лучи) время жизни уменьшается.

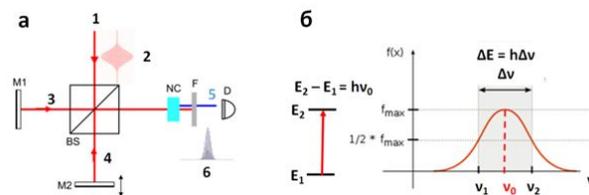


Рисунок 1 – а - Автокоррелятор для измерения длительности лазерного импульса: 1 - импульс от лазера; 2 - профиль импульсов; 3,4 - отраженные лучи; 5 - пучок от нелинейного кристалла (NC); 6 - интенсивность преобразованного света NC; BS – светоделитель (англ. *beamsplitter*); M1 - зеркало; M2 - подвижное зеркало для измерения времени; NC – нелинейный кристалл (преобразователь света от лазера); F - оптический фильтр для света NC; D - детектор. б - характеристика квантового перехода  $E_2 - E_1 = h \nu_0$ ;  $\nu_0$  - резонансная частота;  $f_{max}$  – максимальная величина (интенсивность, оптическая плотность);  $\Delta \nu$  - полуширина.

Импульсная лазерная спектроскопия использует схему с двумя последовательными импульсами: первый - сильный (англ. *pump pulse*) возбуждает атомы или молекулы, а второй импульс (англ. *probe pulse*) фиксирует изменения в объекте. (Рис. 2). Импульсные лазеры сегодня дают возможность экспериментировать в фемтосекундном диапазоне. А за последние годы физика открывала дорогу в атто - ( $1 \text{ ас} = 10^{-18} \text{ с}$ ) изептосекундную ( $1 \text{ зс} = 10^{-21} \text{ с}$ ) спектроскопию. Для таких экспериментов используются лазеры на свободных электронах (англ. *Free Electron Laser, FEL*), которые доступны только на электронных ускорителях.

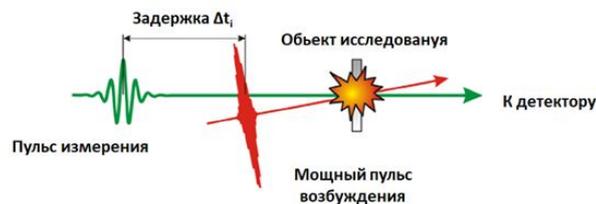


Рисунок 2 – Схема импульсной лазерной спектроскопии: образец возбуждается сильным лазерным импульсом и после  $\Delta t_i$  измеряется более слабым.

## 2. Лазеры на свободных электронах

Новые возможности для импульсной спектроскопии открывают лазеры на свободных электронах. FEL является источником электромагнитного излучения на электронном синхротроне. FEL преобразует релятивистские ГэВ электроны в электромагнитное излучение (фотоны). Преобразование происходит в ондуляторе (от англ. *toundulate* – двигаться волнообразно). В магнитном поле ондулятора импульсы ускоренных электронов преобразуются в когерентные импульсы электромагнитного излучения. Энергия фотонов зависит от энергии релятивистских электронов и параметров ондулятора. Из-за высокой когерентности и интенсивности ( $10^{14}$  фотонов в импульсе), FEL называется лазером, хотя он не имеет активной среды и не создает индуцированное излучение. В настоящее время на ускорителях по всему миру имеются более тридцати FEL с излучением в разных диапазонах спектра. Так FEL, установленный в Дубне (Россия), излучает в миллиметровом диапазоне. Самое коротковолновое излучение в настоящее время имеется на Европейском XFEL (рентгеновский FEL), который находится в DESY (Гамбург, Германия). Длина волны излучения XFEL достигает 0.05 нм (25 кэВ), это разрешающая способность, сопоставимая с размерами структуры атомов.

В 2020 году на немецком электронном синхротроне DESY закончили крупный международный проект по созданию лазера на свободных электронах в диапазоне мягкого рентгеновского излучения FLASH2 (*Freie-Elektronen-Laser am Synchrotron Hamburg*). FLASH2 открыл вторую линию FEL для экспериментов (Рис. 3) [2, 3]. FLASH2 связан с линейным ускорителем для создания ГэВ электронов, которые в магнитном поле ондулятора преобразуются в мягкое рентгеновское излучение. Короткие импульсы электронов с энергией от 0.4 до 1.25 ГэВ создают когерентные мягкие в рентгеновские лучи с энергией от 14 до 310 эВ (длина волны от 90 до 4 нм). Длительность фотонных импульсов составляет от 10 до 200 фс, а средняя энергия составляет от 1 до 1000 мкДж (от  $10^{11}$  до  $10^{14}$  фотонов на импульс). FLASH2 открывает новые возможности для уникальных экспериментов в области физики быстро протекающих процессов.

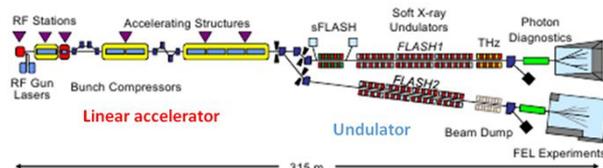


Рисунок 3 – FLASH синхротрон в Гамбурге: линейный ускоритель электронов (*Linear accelerator*) ускоряет электроны до энергии 1.25 ГэВ, испускающие электромагнитное излучение в магнитном поле ондулятора (*Undulator*) [2, 3].

## 3. Спектроскопия на FLASH2

Ультрабыстрая лазерная спектроскопия в течение многих лет развивалась в Институте ядерной физики Общества Макса Планка в Гейдельберге под руководством профессора Томаса Пфайфера (*Thomas Pfeifer*) [4]. Группа профессора Пфайфера расширила свои эксперименты на FLASH2 в Гамбурге, что открыло новые возможности для исследования релаксации возбужденных электронных состояний в молекулах. Профессор Пфайфер по этому поводу отмечает: «Электронные процессы измеряются в очень малой шкале времени в атомах и молекулах, и эти процессы протекают очень быстро. В твердых телах эти процессы замедляются. В атомах и молекулах возбуждения релаксируют в диапазоне аттосекунд» [4].

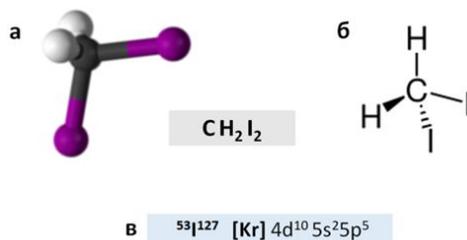


Рисунок 4 – Дийодметан  $\text{CH}_2\text{I}_2$ : структурная модель (а) и химические связи (б); электронная структура атома йода (в)

Группа в качестве объекта выбрала дийодметан  $\text{CH}_2\text{I}_2$  - бесцветную жидкость, которая очень чувствительно реагирует на свет с последующей ионизацией и диссоциацией (рис.4). Целью группы было исследование релаксации высоких электронных состояний при возбуждении мягким рентгеном, в том числе ионизации и диссоциации молекул. Для возбуждения использовалось излучение FLASH2 в диапазоне около 50 эВ ( $\lambda \approx 25$  нм; Рис.5). Возбуждался переход 4d электрона атома йода ( $4d_{5/2-\sigma^*}$ ), d электроны имеют более высокую энергию и приводят к ионизации и диссоциации молекулы. Релаксация изучалась в фемтосекундном диапазоне, результаты опубликованы в журнале Phys.Rev. X [5].

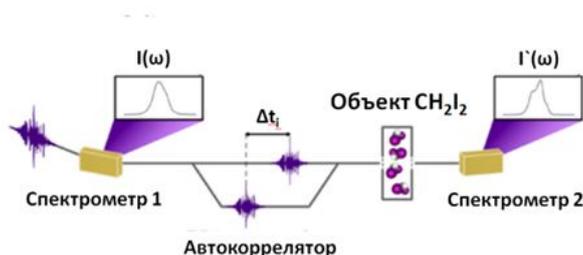


Рисунок 5 – Схема экспериментов с лазером на свободных электронах FLASH2: лазерный импульс  $I(\omega)$  разделяется на два импульса с переменной задержкой  $\Delta t_i$ , которые попадают на образец,  $\Gamma(\omega)$  – измеренный сигнал. Измерения проводятся в диапазоне энергий  $\sim 50$  эВ [5].

Возбуждение во время первого импульса приводит к ионизации и диссоциации молекулы  $\text{CH}_2\text{I}_2$  (Рис.6). Изменение возбужденного состояния молекулы  $\text{CH}_2\text{I}_2$  было проверено путем измерения поглощения (Рис.6В), четко заметного спустя  $\sim 200$  фс после возбуждения. Изменения в молекулярной структуре, определенные по спектрам поглощения, были подтверждены теоретическими расчетами профессора Александра Кулефа (*Alexander Kuleff*, Институт физической химии Университета Гейдельберга). В целом эта работа стала решающим шагом в использовании лазеров на свободных электронах для измерений времени релаксации возбужденных состояний атомов и молекул.

#### 4. Лазер на свободных электронах открывает мир ядерной спектроскопии

Группа профессора Пфайфера использовала лазерную спектроскопию для атомной физики и физики твердого тела. Эти исследования охватывают спектральный диапазон от видимого света до мягкого рентгеновского диапазона с энергиями фотонов в несколько десятков электронвольт. Чтобы войти в диапазон ядерной спектроскопии, необходимо когерентное излучение с энергией несколько килоэлектронвольт. Ядра атомов имеют квантовую структуру с возбужденными состояниями, аналогично электронной оболочке атомов, но с энергией в

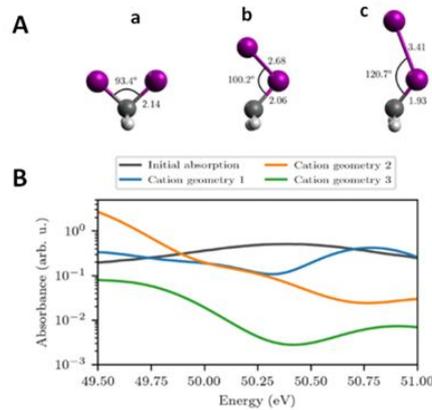


Рисунок 6 – А - Структурные модели  $\text{CH}_2\text{I}_2$ : основное состояние (а), состояние после ионизации  $\text{CH}_2\text{I}_2^+$  (b) и диссоциации  $\text{CH}_2\text{I}\dots\text{I}^+$  (c), расстояния даны в Å. В - Спектр поглощения  $\text{CH}_2\text{I}_2$  в основном состоянии (черная кривая) и расчетные спектры в основном состоянии (синяя кривая), в ионизированном состоянии (красная кривая) и в диссоциированном состоянии (зеленая кривая) [5].

области кэВ и больше. Возбуждение атомных ядер приводит к переходам с излучением гамма-квантов ( $\gamma$ -лучей). В последние годы FEL на французском синхротроне в Гренобле открыл возможности исследования ядерных процессов.

В этом году группа профессора Пфайфера в сотрудничестве с французским синхротроном в Гренобле (ESRF), Научным центром DESY (Гамбург) и Институтом Гельмгольца Университета Йены завершила уникальный эксперимент по возбуждению ядер атомов железа ( $^{57}\text{Fe}$ ), результаты опубликованы в журнале Nature [6]. Эксперимент открыл новые возможности для спектроскопии атомных ядер и дал впервые возможность измерять интервал времени задержки  $\Delta t \approx 10^{-20}$  с (это десять зептосекунды,  $1 \text{ зс} = 10^{-21}$  с). В статье было так много новостей, что рецензии в редакции потребовали два года (подана в декабре 2018 года и принята для печати в январе 2020 года)! Такое длительное время типично для революционных открытий.

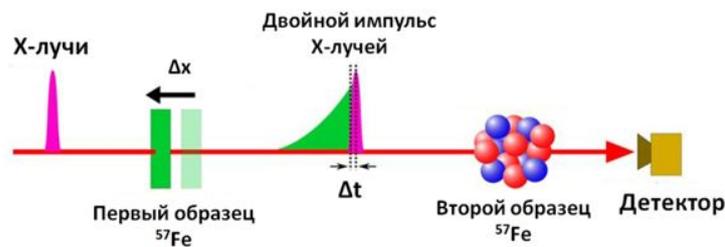


Рисунок 7 – Схема эксперимента когерентного рентгеновского возбуждения атомных ядер  $^{57}\text{Fe}$ . Энергия импульсов 14.4 кэВ ( $\lambda = 0,086$  нм). Первый образец  $^{57}\text{Fe}$  служит для создания двойного когерентного рентгеновского импульса. Для этого образец  $^{57}\text{Fe}$  должен быть перемещен на короткое расстояние ( $\Delta x \leq \lambda/2$ ) во время возбуждающего импульса ( $\tau \approx 10$  фс =  $10^{-14}$  с). Созданный когерентный двойной импульс индуцирует во второй пробе  $^{57}\text{Fe}$  два когерентных состояния, сдвинутых во времени на  $\Delta t$ . Возбужденное ядро  $^{57}\text{Fe}$  во второй пробе излучает  $\gamma$ -излучение, которое обнаруживается по интерференции. Эксперимент впервые продемонстрировал возбуждение атомного ядра когерентным рентгеновским излучением. Удалось создать и измерить сдвиг  $\Delta t \approx 10$  зс =  $10^{-20}$  с [6].

Эксперимент проводился на синхротроне ESRF в Гренобле под руководством профессора Эверса (*Jorg Evers*, Институт Макса Планка для ядерной физики). Это был первый эксперимент на синхротроне для получения и измерения импульсов длительностью порядка зептосекунд. Синхротрон в Гренобле создает рентгеновские импульсы с энергиями в области

килоэлектронвольт со средней длиной импульса  $\tau \approx 10\text{fs}$  ( $10^{-14}$  с). Энергия квантов составляла 14.4 кэВ (длина волны 0.086 нм), что соответствует резонансному переходу в ядре  $^{57}\text{Fe}$  с последующим испусканием  $\gamma$ -лучей. Использовался образец  $^{57}\text{Fe}$  в твердом состоянии, что обеспечивало эмиссию  $\gamma$ -лучей с малой полушириной за счет эффекта Мёссбауера [7]. Схема эксперимента показана на Рис.7. Короткий импульс рентгеновского излучения от синхротрона ( $\tau \approx 10$  фс =  $10^{-14}$  с) возбуждает первую пробу  $^{57}\text{Fe}$ , которая служит для создания двойного импульса рентгеновских лучей (англ. *doublepulse*). Чтобы создать двойной импульс, первый образец должен был слегка передвинут в течение рентгеновского импульса. Сдвиг должен быть маленьким, на длину меньше длины волны рентгеновского излучения ( $\Delta x \approx \lambda/2 \leq 0.043$  нм =  $4.3 \times 10^{-11}$  м), что сопоставимо с радиусом атома водорода! Для этого первый образец  $^{57}\text{Fe}$  помещался на пластинке пьезоэлектрика. Смещение образца на  $\Delta x = \lambda/2$  создавало временную задержку  $\Delta t \approx 140$  зс ( $1.4 \times 10^{-19}$  с). В эксперименте удалось создать маленькие смещения во время короткого импульса синхротрона, которые дали  $\Delta t \approx 10^{-20}$  с = 10 зс! Весь процесс генерации когерентных  $\gamma$ -лучей (от формирования двойного рентгеновского импульса до возбуждения индуцированных переходов во втором  $^{57}\text{Fe}$  образце) осуществлялся в течение времени  $\Delta t \approx 10$  фс. Два когерентных рентгеновских импульса индуцируют во второй пробе  $^{57}\text{Fe}$  возбужденные ядра с последующим излучением с  $\gamma$ -лучей. Когерентность индуцированных рентгеновских лучей наблюдалась по интерференции ([6] рис.2 и 4). Достигнутое когерентное возбуждение атомных ядер и устойчивость двойных рентгеновских импульсов открывают много применений в спектроскопии атомных ядер.

## Список литературы

- 1 Emilio Segre, Die Groben Physiker und ihre Entdeckungen: von Rontgen bis Weinberg, Piper Munchen, 2004.
- 2 Honkavaara K., Faatz B., Feldhaus J., Schreiber S., Treusch R., Vogt M. FLASH: FIRST SOFT X-RAY FEL OPERATING TWO UNDULATOR, Proceedings of FEL, 635 – 639 (2014).
- 3 Free-electron laser FLASH. [Электронный ресурс] - URL: <https://flash.desy.de> (дата обращения: 06.12.2021)
- 4 Welt der Physik: Attosekundenspektroskopie. [Электронный ресурс] - URL: <https://www.weltderphysik.de/gebiet/teilchen/atome-und-molekuele/atome> (дата обращения: 06.12.2021)
- 5 Marc Rebholz et al., All-XUV Pump-Probe Transient Absorption Spectroscopy of the Structural Molecular Dynamics of Di-iodomethane, Phys. Rev. X 11, 031001 (2021).
- 6 Heeg K.P., Kaldun A., Strohm C., Ott Ch., Subramanian R., Lentrodt D., Haber J., Hans-Christian Wille, Goerttler S., Ruffer R., Keitel Ch.H., Rohlsberger R., Pfeifer Th.& Jorg Evers. Coherent X-ray?optical control of nuclear excitons, Nature, 590, 401(2021).<https://doi.org/10.1038/s41586-021-03276-x>
- 7 Rudolf L. Mossbauer, The discovery of the Mossbauer effect, Hyperfine Interactions, 126, 1–12 (2000).

### Сведения об авторах:

*Шварц К.* - академик Латвийской академии наук, доктор физико-математических наук, профессор GSI (Центр по изучению тяжёлых ионов имени Гельмгольца), Дармштат, Германия.

*Даулетбекова А.К.* - кандидат физико-математических наук, профессор кафедры технической физики, Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, ул. Кажымукана, 13, Нур-Султан, Казахстан.

*Сорокин М.* - кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Национального исследовательского центра «Курчатовский институт», Москва, Россия.

*Schwartz K.* - Academician of the Latvian Academy of Sciences, Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor of GSI (Helmholtz Centre for Heavy Ion Research), Darmstadt, Germany.

*Dauletbekova A.* - Candidate of Physical and Mathematical Sciences, Professor of the Department Technical Physics, L.N. Gumilyov Eurasian National University, 13 Kazhymukhan str., Nur-Sultan, Kazakhstan.

*Sorokin M.* - Candidate of Physical and Mathematical Sciences. Senior Researcher at the National Research Centre "Kurchatov Institute", Moscow, Russia.