

# Zeitaufgelöste Attosekunden-Spektroskopie Liveschaltung ins Atom

MATTHIAS UIBERACKER

*Der Energiezustand eines Atoms oder Moleküls kann sich binnen unvorstellbar kurzer Zeitspannen verändern. Spezielle Laser ermöglichen es, mit extrem kurzen Pulsen die Bewegung von Atomen in Molekülen zeitlich aufzulösen. Mit weiteren Tricks gelingt das sogar bei Elektronen, deren Dynamik sich auf der Attosekundenskala entfaltet.*

Wenn man die ultraschnelle Dynamik von Elektronen in Atomen und Molekülen direkt abbilden will, braucht man eine ebenso schnelle „Kameratechnik“. Diese muss außerdem auch noch mikroskopisch kleine Objekte erfassen können. Bis vor kurzem lag eine solche Technik weit außerhalb der Möglichkeiten der Experimentalphysik. Erst modernste Lasertechnik macht sie möglich, und mit einer Kamera im herkömmlichen Sinne hat sie natürlich nichts gemein (Abbildung 1).

In den 1990er-Jahren öffnete die Femtosekunden-Spektroskopie das Fenster zur direkten Abbildung der Bewegungen, die Atome oder Moleküle zum Beispiel während chemischer Reaktionen machen. Femtosekunden ( $10^{-15}$  s) reichen jedoch noch nicht aus, wenn man die Dynamik von Elektronen beispielsweise im Inneren von Atomen in Bildern erfassen will, die so scharf sind, wie es die Gesetze der Quantenphysik zulassen. Dafür braucht man eine „Kamera“, deren „Verschlusszeit“ im Bereich von Attosekunden ( $10^{-18}$  s) liegt (Abbildung 2).

Unsere Gruppe um Ferenc Krausz am Max-Planck-Institut für Quantenphysik – zuvor an der Technischen Universität Wien – entwickelt eine laserbasierte Attosekunden-Spektroskopie, die solche extrem schnellen Aufnahmen

ermöglicht. Dazu haben wir zum einen die etablierte Pump-Probe-Technik der Femtosekunden-Spektroskopie weiterentwickelt, worauf ich in einem späteren Abschnitt näher eingehe. Unsere zweite

wichtige Entwicklung war die Technik einer „lichtkontrollierten Schmierbildkamera“. Die grundlegende Idee zur Schmierbildkamera (Streak camera) hatte Sir Charles Wheatstone (1802-1875) schon 1834 [1]. Sie erlaubt es, einen sehr kurzen Lichtblitz – etwa einer Funkenentladung – zeitlich zu vermessen.

Eine klassische Schmierbildkamera besteht im Wesentlichen aus einer Abbildungsoptik, einem schnell rotierenden Spiegel und einer Fotoplatte (Abbildung 3a). Der Spiegel reflektiert den aufzunehmenden Lichtblitz auf die Fotoplatte. Er rotiert dabei so schnell, dass er das über eine gewisse Zeitspanne einfallende Licht des Blitzes über die Fotoplatte hinweg zu einem Schmierbild ausstreicht. Aus der Rotationsgeschwindigkeit des Spiegels und der Länge des Schmierbildes kann man die Zeitdauer des Lichtblitzes errechnen. Auch der zeitliche Verlauf der Lichtintensität des Blitzes lässt sich aus dem Schmierbild ermitteln, denn er wird direkt im räumlichen Verlauf der Belichtungsstärke abgebildet.

Da der Rotationsgeschwindigkeit des Spiegels mechanische Grenzen gesetzt sind, wurde zur weiteren Steigerung der Aufnahmegeschwindigkeit die elektro-optische Schmierbildkamera entwickelt [2]. Bei ihr ersetzt ein viel schneller veränderbares elektrisches Feld den Spiegel. Damit das funktioniert, muss allerdings zuvor das Licht in einen Elektronenstrom umgewandelt werden. Das erledigt eine Fotokathode. Es entsteht ein Elektronenpuls, dessen zeitlicher Intensitätsverlauf dieselbe Form wie der Lichtpuls aufweist.

Im Prinzip ist die elektro-optische Schmierbildkamera wie eine Braunsche Röhre aufgebaut, funktioniert also wie ein Oszilloskop. Nach der Umwandlung des Lichtpulses in der Fotokathode beschleunigt eine starke positive Spannung den Elektronenpuls in Richtung eines Leuchtschirms mit Phosphorbeschichtung, wo er schließlich für ein Bild sorgt. Auf dem Weg zum Schirm fliegen die Elektronen zwischen zwei Kondensatorplatten hindurch. Diese übernehmen die Rolle des rotierenden Spiegels, denn ihr starkes elektrisches Feld lenkt die Elektronen seitlich ab. Das Feld wird dabei so schnell verändert, dass es den Elektronenpuls zu einem Schmierbild auf dem Schirm aufweitet (Abbildung 3b). Der Verlauf der Intensität dieses Schmierbilds auf der horizontalen Achse des Schirms gibt Aufschluss über den Zeitverlauf des ursprünglichen Lichtblitzes.

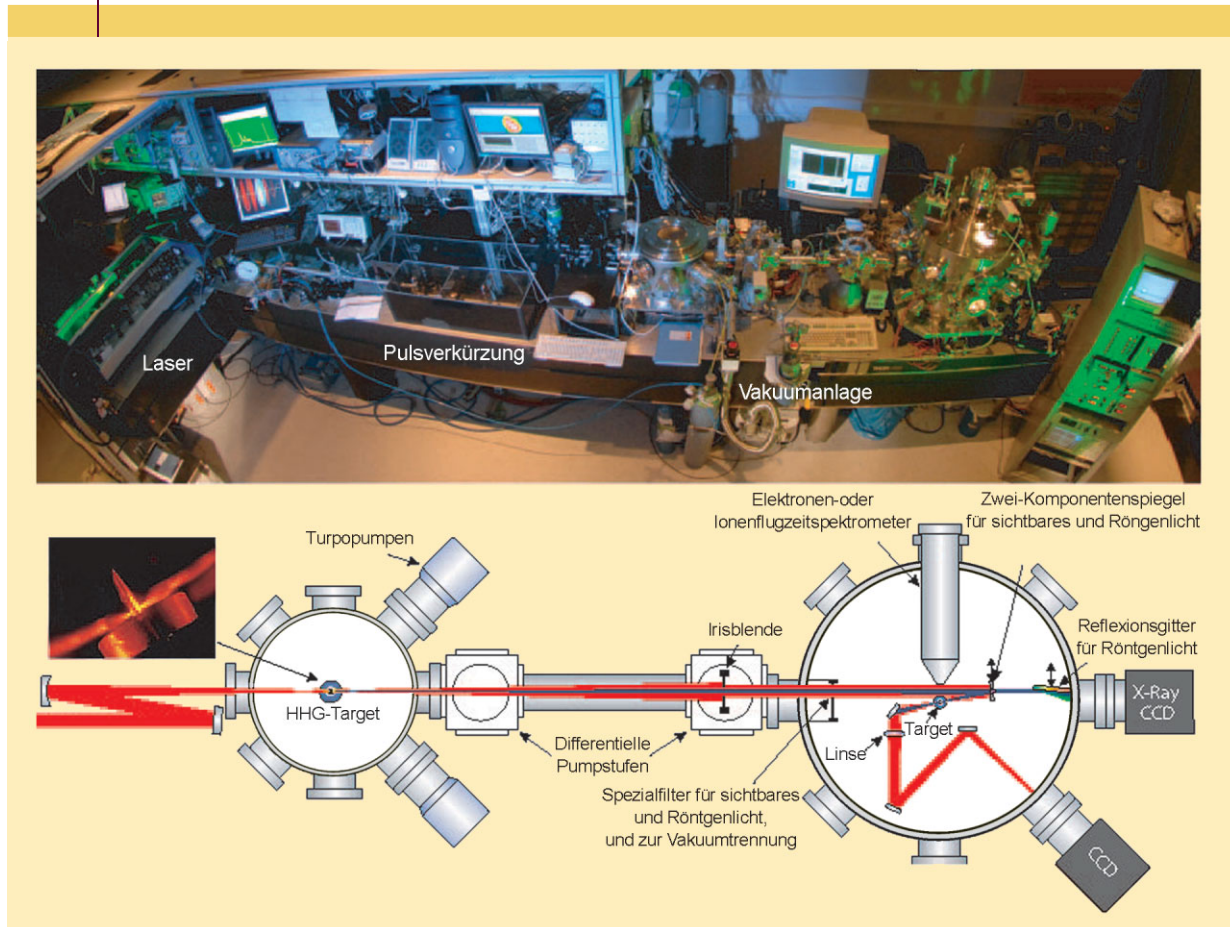
Mit dieser Technologie erreicht man eine beachtliche Zeitauflösung von etwa 200 fs. Sie genügt schon, um die Veränderung größerer Moleküle zu verfolgen. Für Prozesse wie

## INTERNET

Weiterführende Information  
[www.attoworld.de](http://www.attoworld.de)

Kalibrierung des Garching Experiments  
[www.phiu.de](http://www.phiu.de)  
(Special Features/ Zusatzmaterial zu den Heften)

Transmission und Reflexion von Röntgenstrahlung an Materie  
[www.cxro.lbl.gov](http://www.cxro.lbl.gov)

**ABB. 1 | GARCHINGER ATTOSEKUNDEN-EXPERIMENT**


**Aufbau des Attosekunden-Experiments am Max-Planck-Institut für Quantenoptik in Garching. Die linke Vakuumkammer dient der Erzeugung des Röntgenpulses: Der Puls des Femtosekundenlasers ionisiert dazu Edelgasatome (HHG-Target), zum Beispiel Neon, in einem verdünnten Gasstrahl. Sie senden einen Röntgenpuls aus, der zusammen mit dem Femtosekundenpuls durch das Vakuumrohr, die Irisblende und das Spezialfilter in die rechte Vakuumkammer läuft. Dort treffen beide Pulse zeitgleich auf einen Spiegel, der das sichtbare Licht und einen Teil des Röntgenlichts auf das zu untersuchende Target reflektiert. Der innere Teil des Spiegels ist extrem präzise verstellbar und so die Verzögerungszeit zwischen beiden Pulsen am Target kontrolliert variierbar. Die untere CCD-Kamera registriert das durch das Target laufende sichtbare Licht. Die Röntgen-CCD-Kamera (X-Ray CCD) kann zur Diagnose den Röntgenstrahl vermessen, dafür wird der innere Spiegelteil weggefahren.**

Elektronenübergänge zwischen zwei Quantenzuständen im Atom reicht sie jedoch immer noch nicht aus. Keine Elektronik ist schnell genug, um das dafür erforderliche veränderliche Feld an den Kondensatorplatten zu erzeugen. Wir mussten also einen völlig neuen Weg einschlagen. Dazu hatten wir die Idee, den zu langsamen Kondensator durch Lichtwellen zu ersetzen. Das elektrische Feld eines Lichtpulses ändert sich sehr schnell: Im Fall von sichtbarem Licht beträgt die Zeit für die Änderung der Feldstärke vom Minimum zum Maximum ungefähr 1 fs. Damit das elektrische Feld auch stark genug ist, benötigten wir intensives Laserlicht. Damit sollte die Ablenkung des Elektronenstrahls in der Schmierbildkamera vom linken zum rechten Bildschirmrand innerhalb nur einer Femtosekunde gelingen. Folglich wäre die örtliche Auflösung auf dem Schirm noch weit höher – und damit die daraus ablesbare zeitliche Auflösung des Elektronenpulses.

Tatsächlich gelang es uns, diese Idee in einer etwas abgewandelten Variante umzusetzen. Mit dieser lichtkontrollierten Schmierbildkamera konnten wir erstmalig Messungen an Atomen mit Auflösungen unterhalb einer Femtosekunde durchführen.

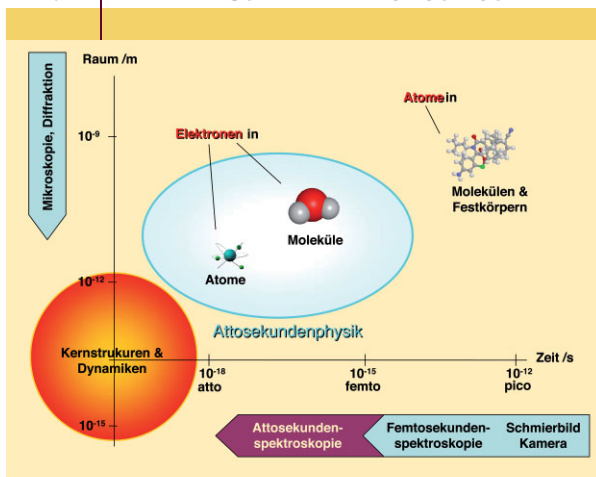
Dabei erreichten wir schon eine Zeitauflösung von nur noch 100 as. Das ist in der zeitaufgelösten Spektroskopie im weichen Röntgenbereich – auf den ich noch näher eingehen – bislang Weltrekord.

### „Fotografieren“ von Atomen

Da die extrem schnellen Prozesse innerhalb von Atomen nicht direkt messbar sind, bedient man sich der Pump-Probe-Technik, die heute in der Femtosekunden-Spektroskopie weit verbreitet ist. Dabei kommen zwei sehr kurze Lichtpulse mit variabler zeitlicher Verzögerung zum Einsatz. Beide Pulse werden auf die zu vermessenden Atome oder Mo-

**Zeitaufgelöste Bilder von molekularen oder atomaren Prozessen, in denen Elektronen die tragende Rolle spielen, erfordern eine spektroskopische Attosekunden-Technik. Räumlich sind diese mikroskopischen Strukturen durch Mikroskopie oder Lichtbeugung zugänglich.**

**ABB. 2 | BILDER AUS DEM MIKROKOSMOS**



leküle fokussiert, treffen dort nacheinander ein und wechselwirken mit der Materie.

Der erste Lichtpuls löst dabei einen Prozess in den Atomen oder Molekülen aus und wird deshalb als Anregungs- oder Pumpimpuls bezeichnet. Er veranlasst die Atome, auf der Zeitskala des angestoßenen Prozesses ihren Zustand auf eine erwünschte Art und Weise zu verändern. Der zweite Puls wird nach der gewählten Verzögerungszeit abgefeuert und tastet zu diesem späteren Zeitpunkt den veränderten Zustand der Atome oder Moleküle ab. Er heißt deshalb Abtast- oder Probepuls.

Mit einem Messvorgang erhält man so den Zustand des untersuchten Systems nach einer bestimmten Verzögerungszeit. Wenn wir diese Messungen nun mit systematisch veränderter (zum Beispiel immer längerer) Verzögerungszeit wiederholen, erhalten wir eine Folge von Messungen, die wir als Schnappschüsse zu diesem Zeitpunkt interpretieren können. Diese „Einzelbilder“ können wir zu einem „Film“ zusammensetzen, der zeigt, wie die betrachteten Atome oder Moleküle auf den Pumpimpuls reagieren. Allerdings gelingt das nur, wenn wir das untersuchte System und vor allem auch den Pump- und Probepuls immer gleich präparieren können. Für die Lichtpulse heißt das, dass wir ihre Phase genau kennen müssen – und das ist keinesfalls trivial, wie wir noch sehen werden.

Damit wir dieses Verfahren anwenden können, muss die Technik noch zwei weitere Voraussetzungen erfüllen. Erstens müssen die Pulsdauern des Pump- und des Probepulses kürzer als die mittlere Dauer des zu beobachtenden Prozesses sein – oder zumindest vergleichbar. Zweitens muss sie es erlauben, die Verzögerungszeit der beiden Pulse auf einen Bruchteil der Prozessdauer genau einzustellen. Je besser diese beiden Voraussetzungen erfüllt sind, desto genauer können wir den zu untersuchenden Prozess im Zeitbereich abtasten.

Für die Vermessung von Prozessen im Sub-Femtosekundenbereich benötigen wir also Lichtpulse, die kürzer als eine Femtosekunde sind. Lichtpulse sind ja eigentlich Wellenpakete, die aus Licht unterschiedlicher Wellenlängen

bestehen. Man kann sie aber auch als Licht in einer Wellenlänge beschreiben, dem eine einhüllende Gauß-Kurve die Pulsform aufträgt. Damit dieser Puls physikalisch definierte Eigenschaften hat, muss in seine Einhüllende mindestens ein Schwingungszyklus der Trägerwelle hineinpassen – also ein Wellenberg und ein Wellental. Sobald wir jedoch Pulse erzeugen wollen, die kürzer als eine Femtosekunde sind, erzwingt dieser Zusammenhang Trägerwellen, deren Wellenlängen im weichen Röntgenbereich liegen.

Leider gibt es noch keine Laser, die Röntgenlicht liefern (Freie-Elektronen-Laser für diesen Spektralbereich wie derjenige am DESY in Hamburg sind erst im Aufbau). Das ist auch der Grund, weshalb die Steigerung der Femtosekunden-Spektroskopie in den Attosekundenbereich hinein so schwierig ist. Zum Glück gibt es einen Trick, mit dem wir weiches Röntgenlicht herstellen können, dessen Eigenschaften unseren Ansprüchen genügt.

### Erzeugung von Attosekundenpulsen

Die Erzeugung des Röntgenpulses beginnt mit einem Femtosekunden-Lichtpuls. Dank der rasanten Entwicklung auf dem Gebiet der Lasertechnik ist es heute fast Routine, Laserpulse im sichtbaren oder nahinfraroten Spektralbereich zu erzeugen, die nur wenige Femtosekunden dauern. Solche Pulse bestehen aus nur 1,5 bis 3 Schwingungsperioden des elektrischen Feldes und werden meist in Titan:Saphir-Lasersystemen hergestellt. Ihre Quelle besteht aus einem optischen Resonator aus Spezialspiegeln, dem Oszillator, in dem sich ein optisch gepumpter Saphirkristall befindet, der mit Titan dotiert ist. Der aus dem Oszillator ausgekoppelte Puls ist mit einer Energie von etwa 4 nJ relativ schwach. Deshalb wird er in einem zweiten System aus meist vier Spiegeln und einem weiteren Titan:Saphir-Kristall verstärkt, indem er darin mehrmals umläuft (Laserverstärker).

In Garching setzen wir derartige Festkörperlasersysteme ein, um Pulse mit einer Dauer von 5 fs und einer Energie von 0,4 mJ zu erzeugen. Dann passen zwei Schwingungsperioden des elektrischen Feldes in die Halbwertsbreite der Gaußschen Einhüllenden. Diese Laserquellen können bis zu 4000 Pulse pro Sekunde abfeuern. Sie sind bei entsprechender Fokussierung stark genug, um zum Beispiel Luftmoleküle zu zerreißen oder Metall zu schneiden.

Sie können auch Edelgasatome ionisieren, und das ist unser Schlüssel zur Erzeugung von Pulsen aus weichem Röntgenlicht in Laserqualität. Dazu richten wir den Laser auf einen Gasstrahl aus Neonatomen (auch andere Edelgase eignen sich), der aus einer kleinen Düse strömt (Abbildung 1 linke Vakuumkammer). Das extrem starke elektrische Feld des Lasers reicht aus, um die Valenzelektronen aus dem Atom herauszureißen. Das sinusförmige E-Feld des zuvor linear polarisierten Laserpulses beschleunigt die freien Elektronen erst kräftig vom Ion weg und nach dem Vorzeichenwechsel wieder zu ihm hin. Mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit trifft das Elektron dabei das Ion mit relativ hoher kinetischer Energie. In diesem Fall wird es vom Cou-

lomb-Feld des Ions erfasst und rasant abgebremst, was zur Emission von elektromagnetischer Strahlung führt, die bis in den Röntgenbereich hinein reichen kann [3].

Da das elektrische Feld des Laserpulses nur in seinen Extrema stark genug ist, um Elektronen vom Atom zu lösen, tritt diese Röntgenstrahlung auch nur in einem sehr kurzen Zeitintervall auf, was wir uns zunutze machen. Dieser Röntgenpuls entsteht um etwa eine Dreiviertelperiode der Laserfrequenz verzögert nach jedem Feldmaximum oder -minimum. Die Verzögerung entspricht dem freien Flug des Elektrons im Laserfeld. Der Vorgang wiederholt sich für jede Halbperiode des Laserfeldes. Innerhalb des Laserpulses entsteht so eine Serie von Röntgenpulsen mit – je nach Phase – unterschiedlichen Photonenenergien, die nur einige hunderte Attosekunden lang sind. Sie haben eine Wellenlänge bis etwa 10 nm, liegen also im Spektrum der weichen Röntgenstrahlung.

Das Spektrum der erzeugten Strahlung besteht aus einer Vielzahl von Harmonischen der Fundamentalwellenlänge des Lasers, enthält also verschiedene Farben. Dies ist das spektrale Analogon für das Auftreten mehrerer kurzer Pulse im Zeitbereich. Man nennt diese Art von Strahlungserzeugung daher Hohe Harmonischen Erzeugung (High Harmonic Generation, HHG). Da die maximal erreichbare Photonenenergie von der Feldstärke abhängt, gibt es einen Attosekundenpuls oder höchstens zwei Attosekundenpulse, die die höchst mögliche Photonenenergie haben. Bei Neonatomen liegt diese zwischen 100 und 150 eV, abhängig von der Lichtintensität im Fokus. Diesen Puls filtert ein spezieller Spiegel, der als Energie-Bandpass wirkt, heraus. So isolieren wir einen einzelnen Attosekundenpuls.

Dieser weiche Röntgenpuls ist nicht nur kurz, sondern hochenergetisch genug, um bis zu den inneren Elektronenschalen eines Atoms durchzudringen. Er eignet sich also hervorragend für die Untersuchung von inneratomaren, elektronischen Prozessen, die ultraschnell ablaufen. Wichtig ist auch, dass die HHG-Röntgenpulse vorwärts gerichtet in einen sehr kleinen Raumwinkel abgestrahlt werden. In dieser Hinsicht haben sie also laserähnliche Eigenschaften.

Für eine klassische Pump-Probe-Anordnung wäre nun noch ein weiterer Attosekundenpuls notwendig. Leider ist der HHG-Prozess extrem ineffizient, denn nur bei etwa einem aus zehn Millionen Edelgasatomen entsteht Röntgenstrahlung. Der Röntgenpuls hat also eine sehr geringe Energie. Man kann zwar zwei sehr schwache Röntgenpulse erzeugen, aber die Wahrscheinlichkeit, dass sie beide dieselben Targetatome treffen ist sehr gering. Folglich müsste man viel zu lange messen, um genügend Signal aufzunehmen. Also mussten wir eine alternative Methode finden, die mit einem Röntgenpuls auskommt.

### Abtasten mit Lichtwellen

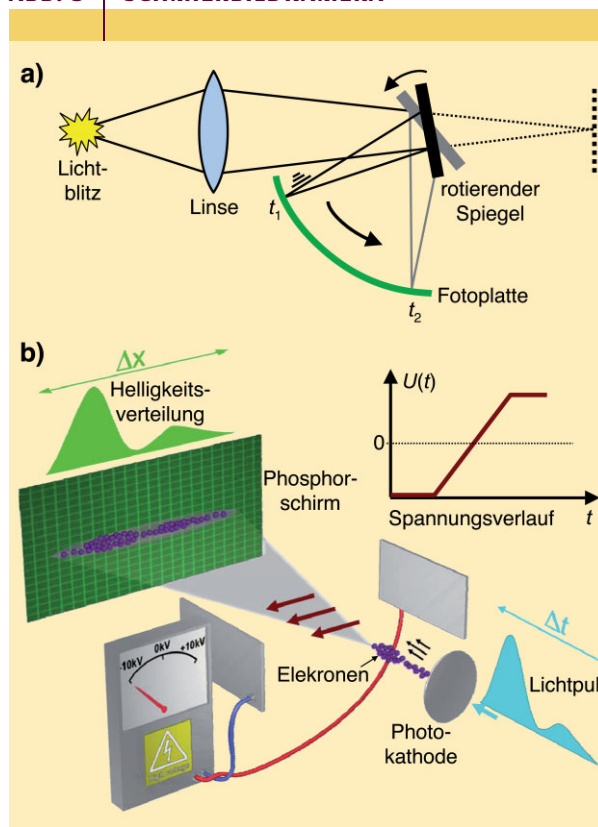
Diese Alternative besteht darin, das starke elektrische Feld des ursprünglichen Laserpulses als Probepuls zu nutzen. Die Einhüllende des Pulses hat zwar eine Halbwertsbreite von etwa 5 fs, aber innerhalb dieser Einhüllenden schwingt

das elektrische Feld viel schneller. Von einem Nulldurchgang bis zum darauf folgenden Maximum benötigt es nur 625 as (entsprechend einer Viertelperiode). Könnten wir uns dieses schnell veränderliche elektrische Feld des Laserpulses in einer ähnlichen Weise wie in der Schmierbildkamera zu Nutze machen, dann würden wir eine Auflösung im Attosekundenbereich erreichen.

Leider gibt es dabei ein Problem: Bei normalen Laserquellen driftet das elektrische Feld unterhalb der Einhüllenden von Puls zu Puls. Unser Ziel ist es ja, von unserem zu untersuchenden Atom oder Molekül die Prozesse, die der Röntgenpuls anstößt, in einer Art Film mit sauber synchronisierten Bildern darzustellen. Solange sich jedoch die Phasenlage des elektrischen Felds gegenüber der Einhüllenden von Puls zu Puls verschiebt, bekommen wir nur unbrauchbare „Wackelbilder“.

Wir müssen also in der Laserquelle das E-Feld fest mit der Einhüllenden verzahnen, um wirklich identische Lichtpulse zu gewinnen. Die Lösung liefert die Phasenstabilisierungstechnik, die das Team von Theodor Hänsch in Garching ursprünglich für den nobelpreisgekrönten Frequenzkamm entwickelt hat (siehe Physik in unserer Zeit 2005, 36 (6), 259). Zusammen mit Hänschs Gruppe integrierten wir sie in unsere Experimente und entwickelten so ein innovatives Pump-Probe-Verfahren. Es kombiniert nun Attosekunden-Röntgenpulse mit dem stabilisierten elektrischen Feld des sichtbaren Femtosekunden-Laserpulses. Damit war der Weg für Messungen im Attosekundenbereich frei.

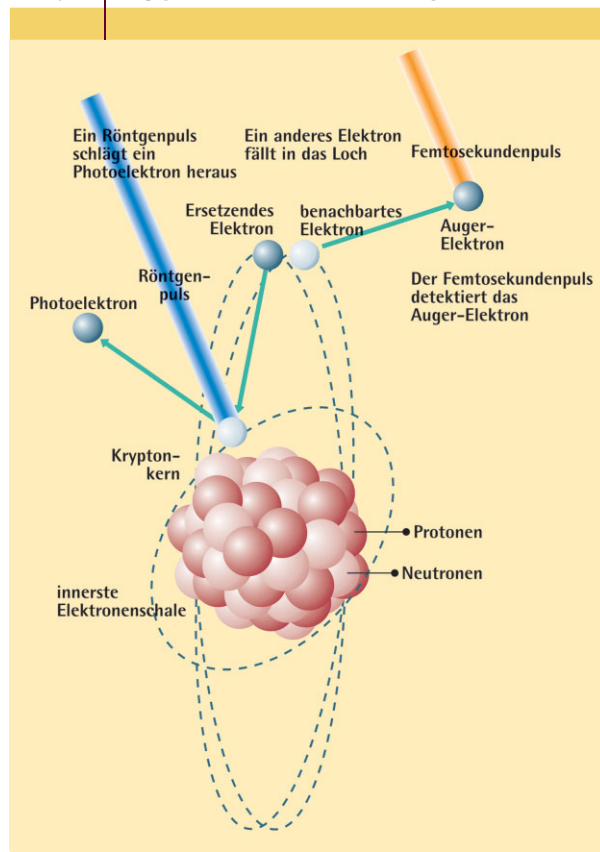
ABB. 3 | SCHMIERBILDKAMERA



Die Schmierbildkamera wandelt den zeitlichen Intensitätsverlauf eines Lichtblitzes in eine räumliche Intensitätsverteilung um. a) Mechanische Schmierbildkamera, b) moderne elektro-optische Schmierbildkamera.



**ABB. 4 | AUGER-ZERFALL IN KRYPTON I**



**Der Attosekunden-Röntgenpuls (blau) dringt ins Innere des Kryptonatoms ein und schlägt ein Photoelektron aus der 3d-Schale heraus. In dieses Loch fällt nach einer charakteristischen Auger-Zeit ein Elektron aus einer höheren Schale hinein. Dadurch wird Energie frei, die ein weiteres Auger-Elektron aus dem Ion heraus hebt. Dieses detektiert der Femtosekunden-Laserpuls.**  
(Grafik: Rohrer, MAXPLANCK-FORSCHUNG.)

### Das Experiment

Unser Experiment besteht im Wesentlichen aus der Ultrakurzpuls-Laserquelle und einer Vakuumapparatur mit zwei Kammern (Abbildung 1) [4]. In der ersten Kammer wird HHG-Strahlung in einem Neon-Gasstrahl (Gas-Target) erzeugt. Dazu fokussieren wir die phasenstabilisierten 5-fs-Laserpulse auf den Gasstrahl in der Mitte der Kammer. Dort wirken sie mit einer Intensität von etwa  $5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  auf die Neonatome ein. Die dabei entstehende HHG-Strahlung zeigt in die gleiche Richtung wie der Laserstrahl und propagiert zusammen mit ihm durch ein Vakuumrohr in die zweite Kammer, wo sich das zu untersuchende Target befindet.

Unterwegs divergiert der Laserstrahl wegen seiner viel größeren Wellenlänge (um 750 nm) stärker als der Röntgenstrahl. Das erlaubt es, beide Strahlen mit einem speziellen Filter räumlich voneinander zu trennen, das als Eintrittsfenster in die zweite Vakuumkammer fungiert. Es besteht aus einer Nitrozellulose-Membran (Pellicle-Foil) mit etwa 25 mm Durchmesser. In ihrer Mitte hat sie ein 3 mm großes Loch, das – vereinfacht gesagt – eine nur 150 nm dicke Folie aus Zirkonium verschließt. Diese Folie blockiert in der Mitte des Strahls das sichtbare Laserlicht, während die Nitrozellulose-Membran umgekehrt die weiche Röntgenstrahlung absorbiert, aber das sichtbare Licht durchlässt. So erhalten wir hinter dem Filter einen Röntgenstrahl mit

etwa 3 mm Durchmesser, den der Laserstrahl ringförmig umschließt.

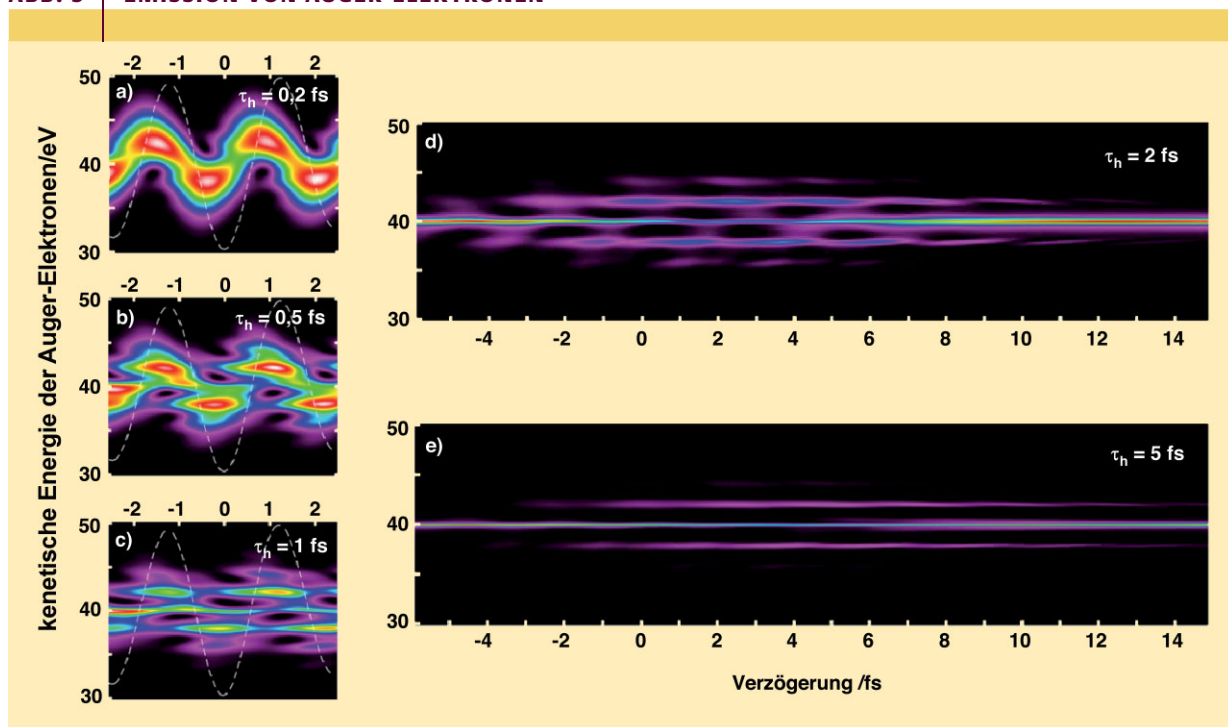
In der zweiten Kammer treffen die beiden Strahlen nun auf einen Fokussierspiegel, der ebenfalls aus zwei konzentrischen Teilen besteht. Der innere Teil hat wieder einen Durchmesser von 3 mm. Er sitzt im Loch des größeren äußeren Teils und ist gegen diesen hoch präzise verschiebbar. Dadurch lässt sich die Ankunft des Röntgenpulses an Target gegenüber dem sichtbaren Puls um  $\pm 300 \text{ fs}$  verschieben. Da aber eine Verschiebung des Spiegels von  $1 \mu\text{m}$  (die den optischen Weg um das Doppelte verlängert) bei Lichtgeschwindigkeit schon einer Zeitverzögerung von 6 fs entspricht, brauchen wir für unsere Experimente im Attosekundenbereich eine Mechanik, die mit mindestens zehn Nanometern räumlicher Auflösung arbeitet. Wir benutzen dazu eine kapazitiv rückgekoppelte Piezo-Verschiebebühne.

Der innere Spiegel hat noch eine weitere wesentliche Eigenschaft. Die Gruppe von Ullrich Heinzmann hat ihn an der Universität Bielefeld mit einer Spezialbeschichtung aus vielen Lagen hergestellt, die abwechselnd aus Molybdän und Silizium bestehen. Diese Beschichtung wirkt nun als Bandpassfilter, der aus der HHG-Strahlung mit ihren vielen Harmonischen nur den höchstenergetischen Teil ausfiltert. Diese Röntgenphotonen haben eine mittlere Energie um 91 eV mit einer Halbwertsbreite von 9 eV. Da diese spektralen Komponenten der HHG-Strahlung zeitlich nur in einem einzigen Attosekundenpuls vorkommen, synthetisiert der Spiegel während der Reflexion einen Einzelpuls aus Röntgenstrahlung. Eine CCD- und eine Röntgen-CCD-Kamera dienen der Justage von Laser- und Röntgenstrahl und zeigen, ob beide Strahlen auch räumlich und zeitlich überlappen. Die Pump-Probe-Experimente führen wir am Target-Gasstrahl durch, der durch den Fokus der beiden Spiegelteile läuft. Wenn die Röntgenpulse Gasatome treffen, dann setzen sie Elektronen frei. Deren kinetische Energie messen wir mit einem Flugzeitspektrometer (Time-of-flight Spectrometer). Mit dieser Technik untersuchen wir auch die entstandenen Ionen verschiedener Ladung und Masse. Die Energiespektren der Elektronen und Ionen geben Aufschluss über die inneratomaren Prozesse.

### Die lichtkontrollierte Schmierbildkamera

Die gesamte Anordnung ergibt nun unsere lichtkontrollierte Schmierbildkamera. Anstelle der Photokathode der elektro-optischen Schmierbildkamera wandeln hier die Edelgas-Atome des Target-Gasstrahls das Röntgenlicht in Elektronen um. Weil dieser Prozess instantan ist, werden die Target-Atome nur so lange ionisiert, wie der Röntgenpuls auf sie einwirkt. Die zeitliche Entwicklung in der Zahl der emittierten Photoelektronen formt zudem genau die zeitliche Einhüllende des Röntgenpulses nach.

Das phasenstabilisierte elektrische Feld des Laserpulses tastet dann als Probepuls die Elektronenemission aus den Target-Atomen ab. Es stellt somit das Ablenkfeld der Schmierbildkamera dar. Allerdings sorgt das elektrische Feld des Femtosekunden-Laserpulses nicht für eine räumliche

**ABB. 5 | EMISSION VON AUGER-ELEKTRONEN**


*Simulation des Impulsübertrags durch das Laserfeld auf Auger-Elektronen bei unterschiedlichen Auger-Zerfallszeiten  $\tau_h$ . Beschränkt sich die Emissionsdauer auf weniger als die halbe Oszillationsperiode, dann verschiebt sich das Spektrum periodisch mit dem Lichtfeld des Probe-Laserpulses (a, b). Wächst die Emissionszeit, dann treten Seitenbänder auf (d, e). Bei diesen langen Zeiten dient auch die Einhüllende des Laserpulses zur Abtastung, nicht das schnell oszillierende E-Feld.*

Ablenkung der Flugbahn der Photoelektronen. Je nach Phasenlage im Moment der Ionisation beschleunigt es die dabei „geborenen“ Elektronen unterschiedlich stark in die jeweilige Richtung, in die das alternierende elektrische Feld der Lichtwelle gerade zeigt. So bildet das Feld den zeitlichen Verlauf der Elektronenemission auf eine verbreiterte Impulsverteilung der geborenen Elektronen ab. Diese können wir mit dem Flugzeitspektrometer registrieren und daraus den ursprünglichen Zeitverlauf bestimmen.

Wenn wir die Phasenbeziehung zwischen dem Röntgenpuls und der Trägerwelle des Laserpulses genau kennen, können wir so aus den Spektrometerdaten die exakte Form des Röntgenpulses ablesen. Um das zu erreichen, mussten wir allerdings zuvor unsere Röntgenpulse und Femtosekunden-Laserpulse genau vermessen und unser Experiment danach kalibrieren. Wir fanden dabei, dass unsere Röntgenpulse typischerweise etwa 250 as lang dauern, was uns genaue Messungen in einem noch kürzeren Zeitintervall bis hinunter zu 100 as erlaubt. Die Frequenz der Röntgenpulse bleibt über ihre Zeitdauer hinweg stabil [5]. Es gelang uns auch, den Verlauf der Femtosekundenpulse präzise zu vermessen [6]. Wer sich für dieses Kalibrierungsverfahren näher interessiert, findet eine genauere Beschreibung auf [www.phiu.de](http://www.phiu.de) unter „Special Features/Zusatzmaterial zu den Heften“.

### Auger-Zerfall in Krypton

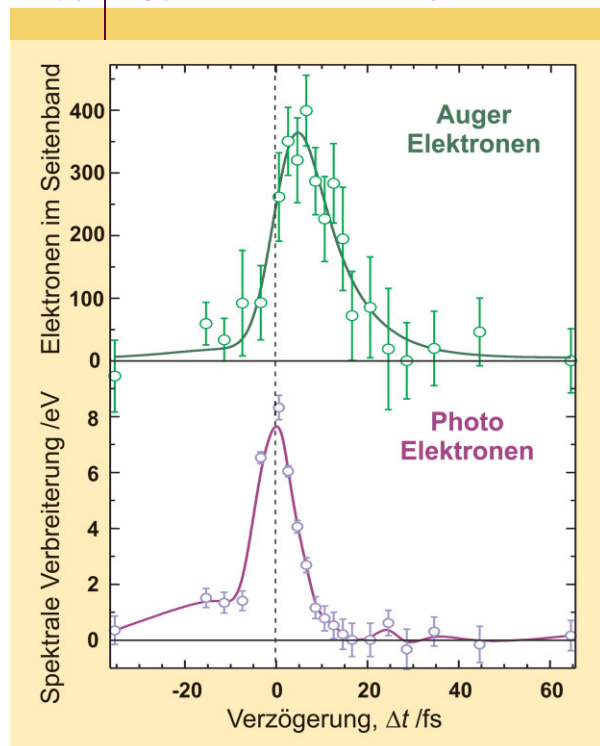
Mit unserer Attosekunden-Schmierbildkamera können wir nun erstmals ultraschnelle inneratomare Prozesse direkt und zeitaufgelöst „abbilden“, die zuvor nur der Quantentheorie zugänglich waren. Ein Beispiel ist der Auger-Prozess

in Kryptonatomen. Trifft das Röntgenphoton mit 90 eV Energie auf ein solches Atom, so schlägt es neben Valenzelektronen häufig ein Elektron von dem tiefer liegenden 3d-Orbital heraus. Das so entstandene Ion versucht, seinen Energiezustand zu minimieren. Also wird es nach einer gewissen charakteristischen Zeit  $\tau_h$  die Leerstelle im 3d-Orbital mit einem Elektron aus einer darüber liegenden Schale füllen. Dabei wird Energie frei. Das Ion kann diese Energie entweder in Form eines Fluoreszenzphotons oder durch einen Auger-Prozess abgeben.

Der Auger-Prozess überträgt die freiwerdende Energie an ein weiteres Elektron des Ions. Ist diese Energie groß genug, dann kann dieses Auger-Elektron dem Ion entkommen, und wir können es mit einem Elektronendetektor registrieren. Bei unserem Experiment setzt also der Röntgenpuls sofort ein Photoelektron frei. Dann dauert es eine sehr kurze Zeit  $\tau_h$ , bis das Auger-Elektron das Ion verlässt. Weil dieser Prozess sehr schnell ist, müssen wir den Spiegel so justieren, dass der Röntgen-Pumppuls und der Laser-Probe-puls zeitgleich am Target eintreffen. Da der Laserpuls rund 5 fs braucht, also im Vergleich zum Röntgenpuls relativ „lange“, nimmt er das Auger-Elektron mit und „kickt“ es in den Detektor. Abbildung 4 zeigt den kompletten Vorgang für ein einzelnes Kryptonatom.

Mit unserem Experiment konnten wir die Auger-Zerfallszeit  $\tau_h$ , die der Lebensdauer der 3d-Leerstelle entspricht, erstmals direkt messen. Dazu mussten wir die Emissionszeitpunkte der Photoelektronen und der Auger-Elektronen miteinander vergleichen. Natürlich treffen Pump- und Probe-pulse nicht ein einzelnes Kryptonatom, sondern mehrere im Gasstrahl. Folglich wird Emissionsrate der Auger-Elek-

**ABB. 6 AUGER-ZERFALL IN KRYPTON II**

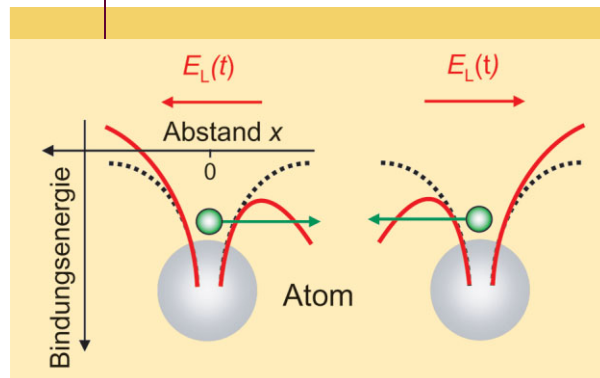


Den Signalen der Photoelektronen (unten) folgen die Signale der Auger-Elektronen zeitlich verzögert. Daraus kann die Auger-Zerfallszeit bestimmt werden ( $\tau_h = 7,9 \pm 1,0$  fs).

tronen aus den beleuchteten Atomen während der Röntgenpulsdauer rasch ansteigen und dann einen exponentiell abklingenden Zeitverlauf mit der Zeitkonstante  $\tau_h$  aufweisen, während die Photoelektronen nur während der Röntgenpulsdauer emittiert werden.

Abbildung 5 zeigt simulierte Auger-Elektronenspektren für mehrere Verzögerungszeiten bei fünf verschiedenen Zerfallszeiten  $\tau_h$ , wie sie nach der Theorie zu erwarten sind. Wir konnten einen Teil davon mit unseren Messungen bestätigen. Man erkennt deutlich zwei Verhaltensweisen. Bei sehr kurzen Zerfallszeiten (Abbildung 5a) oszilliert die spektrale Auger-Linie periodisch um eine mittlere Energie von 40 eV. Die Auger-Elektronen werden nämlich auf einem sehr kurzen Zeitintervall emittiert. Also erwischen alle diese Elektronen die nahezu gleiche Phase des Probe-Laserfelds. Sie erfahren dadurch einen ähnlichen Impulsübertrag durch das Laser-Lichtfeld. Deshalb bildet die registrierte kineti-

**ABB. 7 TUNNELIONISATION**



Das starke elektrische Feld des Laserpulses verzerrt das ursprüngliche Coulomb-Potential des Atomkerns (gestrichelte Linie) so stark (rot), dass das Elektron (grün) aus dem Atom heraustunneln kann.

sche Energie der Auger-Elektronen die Sinusschwingung des E-Vektors im Lichtfeld in Abbildung 5a ziemlich genau nach. Ist die Zerfalls- und somit die Emissionszeit länger, dann wird die periodische Modulation immer stärker von Interferenzerscheinungen geprägt (Abbildung 5b, c). Mit wachsenden Zerfallszeiten von mehreren Femtosekunden bilden sich Seitenbänder aus, die dem Abstand der Laserphotonenenergie von den 40 eV entsprechen (Abbildung 5d, e).

Aus unseren Messreihen konnten wir die charakteristische Lebensdauer - oder Auger-Zeit - der 3d-Leerstelle im Kryptonion bestimmen:  $\tau_h = 7,9 \pm 1,0$  fs (Abbildung 6), [7]. Sie stimmt sehr gut mit frequenz aufgelösten Messungen überein, bei denen die Breite der aufgenommenen Auger-Linien ausgewertet wird. Damit gelang es uns zum ersten Mal, einen nur wenige Femtosekunden andauernden Auger-Prozess im Atom zeitlich abzutasten - zu „filmen“.

### Zeitliche Abtastung einer Ionisierung

Interessant ist auch die Frage, auf welche Weise ein intensiver Lichtpuls wie unser sichtbarer 5-fs-Puls die Targetatome ionisiert. Nach unserem heutigen Verständnis der Wechselwirkung zwischen Licht und Materie kann das E-Feld eines kurzen, intensiven Lichtpulses das sehr starke Coulomb-Feld eines Atomkerns, das die Elektronen bindet, verzerren. Dazu müssen beide elektrischen Felder etwa gleich stark sein. Das Coulomb-Potential wird kurzzeitig so verformt, dass sich effektiv eine Barriere ausbildet, durch die das Elektron tunneln kann (Abbildung 7). Dieser Vorgang wird als Tunnelionisation bezeichnet. Leonid Keldysh beschrieb ihn bereits 1965 theoretisch [8].

Abhängig von den bestrahlten Atomen braucht man dafür mindestens eine Lichtintensität von etwa  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. Eine geringere Intensität führt dagegen zu einer Multiphotonenionisation, deren Zeitverhalten von der Tunnelionisation abweicht. Während die Multiphotonenionisation nach der Theorie im Wesentlichen der Laserpulseinhüllenden folgt, hängt die Tunnelionisation hingegen von der instantanen Feldstärke des Lasers ab. Folglich tritt sie nur sehr kurz an den Extrema des Feldstärkenverlaufes auf. Da viele weiterführende Theorien auf dem Modell der Tunnelionisation beruhen, diese jedoch noch nie präzise zeitaufgelöst gemessen wurde, haben wir das mit unserer Attosekunden-Messanordnung versucht.

Tatsächlich gelang es uns 2006 erstmals, die zeitliche Ionisationsdynamik an Neonatomen zu beobachten [9]. Dafür vertauschten wir unser Elektronenspektrometer gegen ein Ionenspektrometer, denn damit konnten wir direkt die Anzahl der Ionen verschiedener Ladungsstufen und Massen auflösen. Weil unser Röntgenpuls eine hohe Photonenenergie hat, erzeugt er einfach und sogar doppelt geladene Neonionen ( $\text{Ne}^+$  und  $\text{Ne}^{2+}$ ). In zwei Prozent dieser Wechselwirkungen entstehen einfach geladene Ionen, bei denen ein Elektron auf ein höheres, vorher nicht besetztes Energieniveau angeregt ist. Diese angeregten Zustände sind bei Edelgasen sehr langlebig (einige Piko- bis Nanosekunden).

Da dieses Elektron nun schwächer gebunden ist, können wir das zugehörige Ion mit dem sichtbaren Laserpuls viel leichter ionisieren.

Ist unser Laser richtig eingestellt, dann wird er nur diese angeregten  $\text{Ne}^+$ -Ionen weiter ionisieren. In diesem Fall werden wir danach feststellen, dass sich die Anzahl der  $\text{Ne}^{2+}$ -Ionen erhöht hat. Nun können wir unseren Spiegel auch so justieren, dass der Laserpuls zeitlich vor dem Röntgenpuls auf die Neonatome trifft ( $\Delta t < 0$  in Abbildung 8): Dann passiert nichts. Erst wenn der Röntgenpuls als erster Puls eintrifft ( $\Delta t > 0$ ) und die angeregten  $\text{Ne}^+$ -Ionen generiert, kann der dann nachfolgende Laserpuls diese zu  $\text{Ne}^{2+}$  ionisieren. Indem wir unsere Messserie von negativer zu positiver Verzögerung variieren (bei  $\Delta t = 0$  überlappen die Intensitätsmaxima beider Pulse), registrieren wir einen ansteigenden Verlauf des  $\text{Ne}^{2+}$ -Signals. Der Verlauf entspricht der zeitlich aufgelösten Laserionisation. Abbildung 8 zeigt diesen Verlauf als grüne Kurven mit Stufen. Diese Stufen weisen eindeutig nach, dass wir tatsächlich – zumindest teilweise – Tunnelionisation erzeugt haben.

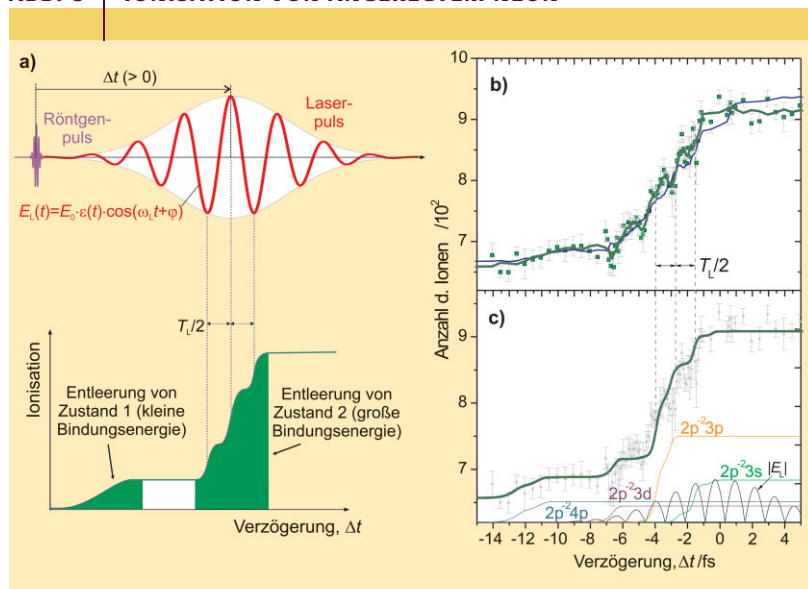
Trotz Abweichungen stimmen die Daten sehr gut mit der Theorie der Tunnelionisation überein, die diese Stufen voraussagt (Abbildung 9 rechts unten). Die minimale Anstiegszeit der Stufen gibt Aufschluss über die Zeit, in der das Elektron tunneln kann. Eine Stufe offenbart auch die Zeit, die der Röntgenpuls zum Anregen der Ionisation braucht. Dabei nehmen wir an, dass das Tunneln und die Ionisation instantan, also ohne Zeitverzögerung gegenüber den auslösenden Pulsen, ablaufen. Im Moment können wir wegen des ungünstigen Verhältnisses von Signal zu Rauschen für beide Prozesse nur eine Obergrenze der Zeitdauer angeben, die bei 380 as liegt.

Mit einem verbesserten Experiment hoffen wir, in Zukunft noch kürzere Momente auflösen zu können. Dann können wir vielleicht direkt messen, wie lange das Tunneln der Elektronen tatsächlich dauert. Wir konnten schon nachweisen, dass wir Röntgenpulse unter 200 as Dauer erzeugen können. Einer weiteren Pulsverkürzung steht bislang keine prinzipielle Grenze entgegen. Stehen auch noch stärkere Röntgenpuls-Quellen zur Verfügung, dann können wir mit diesen Werkzeugen bald den Mikrokosmos der Materie extrem präzise untersuchen. Vermutlich wird das einige physikalische Überraschungen bringen.

### Zusammenfassung

Mit sehr kurzen Laserpulsen aus sichtbarem Licht und noch kürzeren Röntgenpulsen ist es möglich, atomare Prozesse auf der Zeitskala von wenigen hundert Attosekunden zu vermessen. Weiche Röntgenpulse mit einer Dauer von 250 Attosekunden konnten schon erzeugt werden. Sie erlauben Auflösung der Messzeit von etwa 100 Attosekunden. Mit Hilfe dieser Pulse gelang es erstmals, die einzelnen Schwingungen des elektrischen Feldes eines Laserpulses aufzuzeichnen. Damit wurden zum ersten Mal Auger-Prozesse in Edelgasatomen abgetastet. Das gelang auch bei der Ionisation von Materie durch starke Lichtpulse.

ABB. 8 IONISATION VON ANGEREGTEM NEON



**a)** Mit Pump-Probe-Technik abgetastete Ionisierung von zwei unterschiedlich stark gebundenen elektronischen Zuständen im Neonatom. Der schwach gebundene Zustand (links) wird schon bei geringer Laserintensität entleert, der stärker gebundene Zustand erst bei höherer Intensität (rechts). **b)** Anzahl der erzeugten  $\text{Ne}^{2+}$ -Ionen in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit zwischen Pump- und Probepuls. Die grüne Messkurve (gemittelt) weist die für die Tunnelionisation charakteristischen Stufen auf. **c)** Simulation dieser Messung mit der Theorie der Tunnelionisation.

### Stichworte

Attosekunden-Spektroskopie, Schmierbildkamera, Femtosekunden-Laserpuls, Röntgenpuls, elektrisches Feld von Licht, Auger-Prozess, Tunnelionisation.

### Literatur

- [1] C. Wheatstone, Phil. Trans. **1834**, 583.
- [2] D. J. Bradley et al., Opt. Commun. **1971**, 2, 391.
- [3] M. Lewenstein, Phys. Rev. A **1994**, 49, 2117.
- [4] M. Drescher et al., Science **2001**, 291, 1923.
- [5] R. Kienberger et al., Nature **2004**, 427, 817.
- [6] E. Goulielmakis et al., Science **2004**, 305, 1267.
- [7] M. Drescher et al., Nature **2002**, 419, 783.
- [8] L. V. Keldysh, Sov. Phys. JETP **1965**, 20, 1307.
- [9] M. Uiberacker et al., Nature **2007**, 446, 627.

### Der Autor



Matthias Uiberacker studierte Elektrotechnik und promovierte an der TU Wien. Seit 2005 ist er Assistent an der Ludwig Maximilians Universität in München. Er forscht am Max-Planck-Institut für Quantenoptik in Garching in der Gruppe des Direktors Ferenc Krausz.

#### Anschrift:

Dr. Matthias Uiberacker, Abteilung für Attosekunden- und Hochfeldphysik, Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans Kopfermann Strasse 1, 85748 Garching.