

# Atomare Cluster im Fokus

Intensive Röntgenpulse enthüllen die Struktur und ultraschnelle Entwicklung einzelner Nanoteilchen.

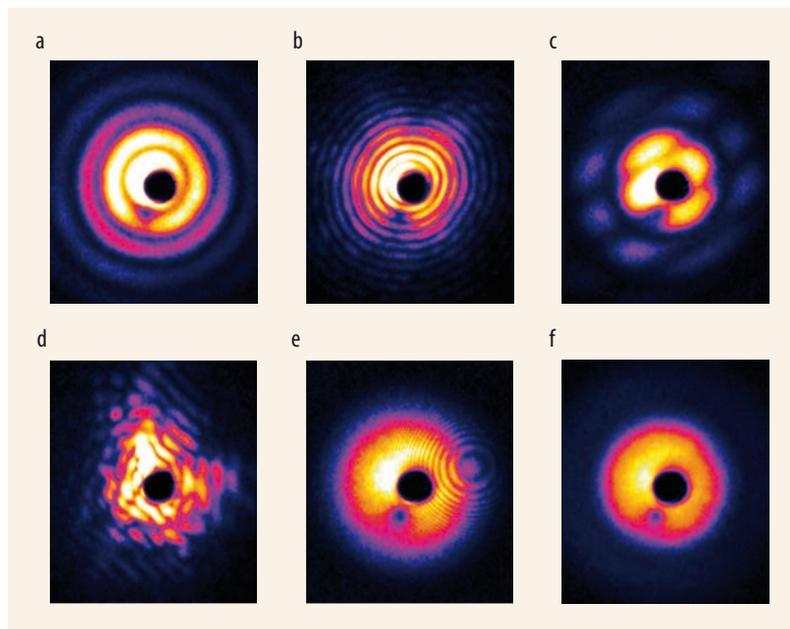
Daniela Rupp, Thomas Fennel und Thomas Möller

Atomare Cluster sind einfache und komplexe Systeme zugleich. Ihre einstellbare Größe macht sie zu idealen Modellsystemen, um die Geheimnisse und neuen Anwendungsmöglichkeiten intensiver Licht-Materie-Wechselwirkungen aufzudecken. Röntgenlaser erlauben es heute, Streubilder von einzelnen Clustern aufzuzeichnen – das macht ihre individuelle Form und ultraschnelle Dynamik erstmals sichtbar.

Intensives Laserlicht kommt in vielen Bereichen zum Einsatz, von der Materialbearbeitung über Chirurgie bis hin zur kontrollierten Kernfusion. Üblicherweise denkt man dabei an stark kollimierte Lichtstrahlen im sichtbaren Spektrum. Heute gibt es auch laserähnliche Strahlung mit Wellenlängen im Röntgenbereich [1]. Dies wurde durch die Entwicklung von Freie-Elektronen-Lasern (FEL) möglich, die eine neuartige Form der Synchrotronstrahlungsquellen darstellen. In einem FEL durchlaufen hochrelativistische Elektronenpulse speziell geformte Magnetstrukturen, so genannte Undulatoren. Die Magnetfelder zwingen die Elektronen auf eine Wellenbahn, sodass diese Strahlung emittieren. Eine Mikrostrukturierung der Pulse sorgt dabei für die extrem verstärkte kohärente Abstrahlung. Da die Elektronenpulse in einem FEL zudem sehr kurz sind, erhält man bis zu zehn Größenordnungen intensivere Lichtpulse als in Speicherringen, den herkömmlichen Quellen von Synchrotronstrahlung [1, 2].

Dank seiner kurzen Wellenlänge lässt sich Röntgenlicht zu Strahlflecken bis unter 1  $\mu\text{m}$  Durchmesser fokussieren, sodass sich im Extremfall Leistungsdichten von mehr als  $10^{18}$   $\text{W}/\text{cm}^2$  ergeben [3]. Das entspricht einer Fokussierung des gesamten auf die Erde auftreffenden Sonnenlichts auf die Fläche eines Fingernagels – natürlich nur für einen sehr kurzen Moment. Die Verbindung von hoher räumlicher Auflösung durch die kurze Wellenlänge und extrem geringer Pulslänge bis hinunter zu wenigen Femtosekunden erlaubt es erstmals, dynamische Prozesse im Bereich atomarer Längen- und Zeitskalen durch Streuexperimente sichtbar zu machen [4].

Dieser Ansatz wird oft mit dem Begriff „Molecular Movie“ verknüpft und zielt perspektivisch darauf ab, Prozesse wie chemische Reaktionen oder die Magnetisierung eines Materials auf atomarer Skala zu verfolgen. Allerdings wird jede Probe bei solch intensiver



Unterschiedliche Streubilder entstehen je nach Größe (a, b) und Form (c, d) der Xenoncluster im Fokus des Röntgenpulses. Während ein zweiter Cluster im

Fokus sich durch ein deutliches Interferenzmuster verrät (e), ist keine Struktur mehr zu erkennen, wenn viele Cluster gleichzeitig beleuchtet werden (f).

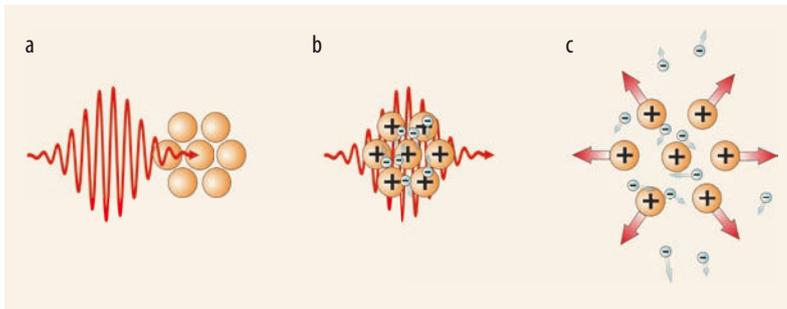
Bestrahlung verändert und eventuell sogar zerstört [5]: Beobachtung und Veränderung sind also nicht voneinander zu trennen. Darum gilt es, die Wechselwirkung intensiver Röntgenpulse mit Materie zu verstehen. Zunächst kommen die einfachsten Systeme in Betracht – isolierte Atome [6]. In größeren Systemen, die aus vielen einzelnen Atomen bestehen, gibt es aber weitere sehr wichtige Prozesse.

An dieser Stelle kommen Cluster und Nanokristalle ins Spiel, die sich als ideale Nanolabore für intensive

## KOMPAKT

- Ein Freie-Elektronen-Laser kann extrem kurze und intensive Pulse von Röntgenstrahlung erzeugen.
- Wechselwirken diese Röntgenpulse mit Materie, z. B. mit atomaren Clustern, enthält das Streubild eine Momentaufnahme ihrer Struktur.
- Eine neue Methode ist die Weitwinkelstreuung, mit der die dreidimensionale Form der Cluster bestimmt werden kann.
- Auch die Dynamik atomarer Cluster nach der Anregung mit intensiven Laserpulsen lässt sich so beobachten.

**Dr. Daniela Rupp**  
Max-Born Institut  
Berlin, Max-Born-  
Str. 2A, 12489 Berlin,  
**Prof. Dr. Thomas  
Fennel**, Max-Born-  
Institut Berlin, Max-  
Born-Str. 2A, 12489  
Berlin und Institut  
für Physik, Universi-  
tät Rostock, Albert-  
Einstein-Str. 23,  
18059 Rostock und  
**Prof. Dr. Thomas  
Möller**, Institut für  
Optik und Atomare  
Physik, TU Berlin,  
Hardenbergstr. 36,  
10623 Berlin



**Abb. 1** Während der Zündungsphase ionisiert der eintreffende Röntgenpuls den Cluster (a). Beim Pulsmaximum ist die Wechselwirkungsphase erreicht, in

der Energie im Cluster deponiert wird (b). Dadurch dissoziiert der Cluster in der abschließenden Expansionsphase bis zur vollständigen Zerstörung (c).

Licht-Materie-Wechselwirkungen erwiesen haben. Sie lassen sich gezielt in Größen von wenigen Atomen bis zu einigen 100 nm herstellen und bilden so eine Brücke zwischen der mikroskopischen Welt der Atome und Moleküle und der makroskopischen Welt ausgedehnter Festkörper. Entscheidend ist, dass Cluster in der Gasphase hergestellt und untersucht werden können und somit weder vor noch nach der Laseranregung störende Wechselwirkungen mit einer Unterlage stattfinden können. Im Licht von Röntgenlasern stehen Cluster an der Schnittstelle zwischen experimenteller und theoretischer Grundlagenforschung [8, 9].

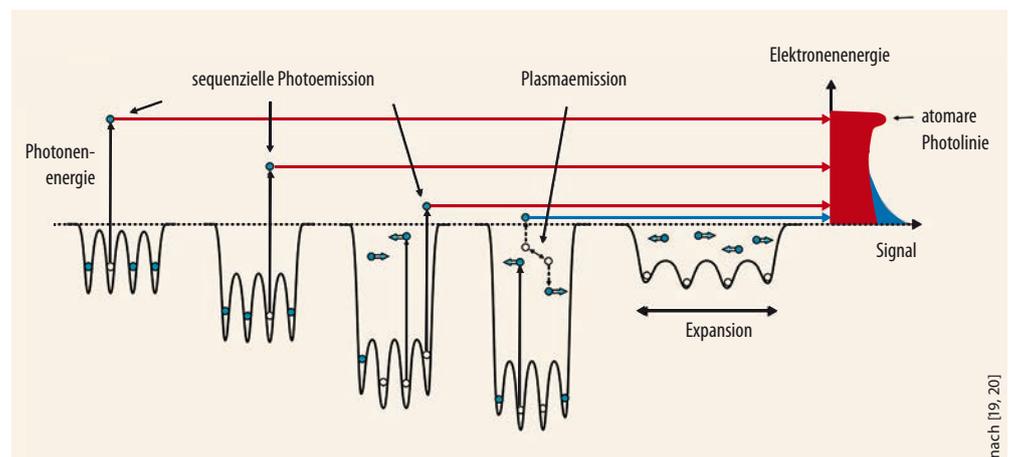
Bei FLASH in Hamburg wurden in den weltweit ersten Experimenten mit einem kurzwelligen FEL atomare Cluster untersucht [10]. Es zeigten sich bereits überraschende nichtlineare Effekte wie eine verglichen mit isolierten Atomen sehr viel stärkere Ionisation [11 – 13]. Seit den ersten Experimenten hat sich die Forschung mit Röntgen-FELs in Tiefe und Breite weiterentwickelt und umfasst heute astrophysikalische Fragestellungen, z. B. nach den Eigenschaften der Materie im Inneren des Jupiters, ebenso wie die Frage nach dem Aufbau von Viren [14, 15]. Die direkte Abbildung der Struktur und ultraschnellen Dynamik von Nanopartikeln ist dabei ein zentraler Schwerpunkt, auf den hier im Folgenden genauer eingegangen werden soll.

Setzt man atomare Cluster intensivem Laserlicht aus, beginnt eine komplexe Entwicklung, die in erster Näherung unabhängig von der Wellenlänge in drei

Phasen verläuft (Abb. 1). Zuerst wurde diese Beschreibung für die Clusteranregung durch intensive nahinfrarote oder sichtbare Laserfelder entwickelt [16], sie lässt sich aber in den Röntgenbereich übertragen. Im ersten Schritt, der Zündungsphase, werden einige der an den Atomen lokalisierten Elektronen angeregt und freigesetzt. Wegen der wachsenden anziehenden Ladung der zurückbleibenden Ionen werden später erzeugte Elektronen vom Cluster eingefangen, und es bildet sich ein Nanoplasma in seinem Inneren. Im zweiten Schritt, der Wechselwirkungsphase, nehmen die als quasifrei bezeichneten Elektronen je nach Wellenlänge weiter Energie auf und verteilen diese durch Stöße um. Im dritten Schritt, der Expansionsphase, durchläuft das System eine eng miteinander verkoppelte Ionen- und Elektronendynamik und zerplatzt schließlich in Fragmente.

Die besondere Situation bei kurzen Wellenlängen im extremen Ultraviolett- (EUV) und Röntgenbereich entsteht dadurch, dass die Photonenenergie das Ionisationspotential der Atome übersteigt (Abb. 2). Die Clusteratome können durch die Absorption einzelner Photonen ionisiert werden, während dazu im sichtbaren Wellenlängenbereich gleichzeitig mehrere Photonen nichtlinear absorbiert werden müssten. Das erste Elektron, das den Cluster verlässt, trägt die Überschussenergie der atomaren Photoionisation als kinetische Energie davon. Mit jedem folgenden Elektron wird das Clusterpotential tiefer, sodass die kinetische Energie der Photoelektronen schrittweise sinkt, bis keine direkte Photoemission mehr auftritt. Charakteristisch sind ein plateauartiges Energiespektrum der Photoelektronen aufgrund der sequenziellen Aufladung, eine verzögerte Bildung des Nanoplasmas, und ein nur geringer Beitrag durch thermische Elektronenemission [17]. Im Unterschied zum sichtbaren und infraroten Bereich dominiert zudem bei der Energieaufnahme nicht die Stoßheizung. Bei dieser nehmen Elektronen im Laserfeld zunächst Energie in Form einer gerichteten Bewegung auf, wandeln sie durch Stöße mit Atomen oder Ionen in thermische Energie um und ermöglichen so einen großen Energieeintrag in den Cluster [18]. Die Energieaufnahme pro Stoß ist etwa proportional zum ponderomotorischen Potential,

**Abb. 2** Das erste ausgelöste Elektron trägt die Differenz der Photonenenergie und der Bindungsenergie. Das ansteigende Coulomb-Potential des zunehmend geladenen Clusters bremst nachfolgende Elektronen ab (rot). Die sequenzielle Photoemission stoppt, wenn die von den Atomen gelösten Elektronen im Clusterpotential gefangen bleiben. In diesem Nanoplasma verursachen Stöße zwischen Elektronen einen Energieaustausch, der ein thermisches Abdampfen der schnellsten Plasmaelektronen ermöglicht (Plasmaemission, blau).



nach [19, 20]

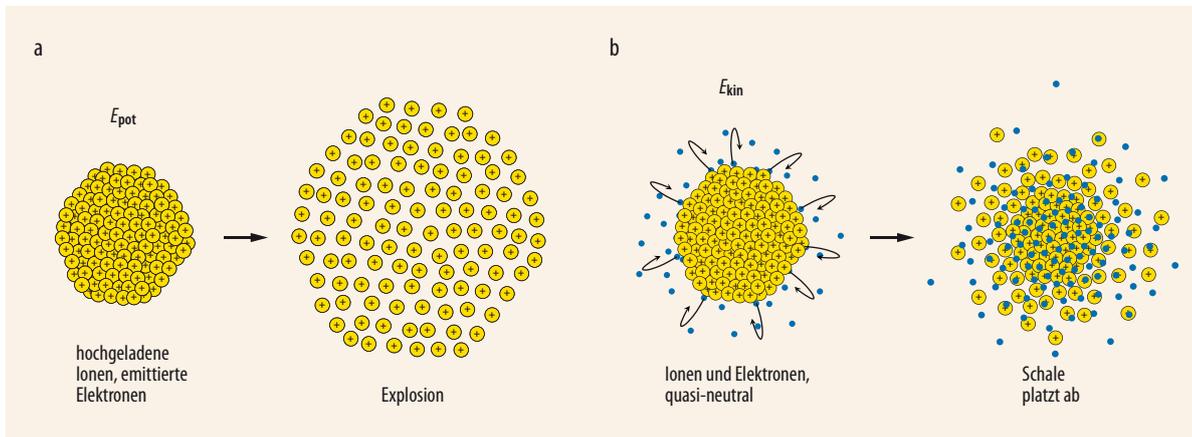


Abb. 3 Im Grenzfall der Coulomb-Explosion expandiert der gesamte Cluster gleichmäßig (a), während bei der hydrodynamischen Expansion die Oberfläche des Clusters Schicht für Schicht abplatzt (b).

das aber mit dem Quadrat der Wellenlänge skaliert und deshalb für kurze Wellenlängen verschwindet. Übrig bleibt die Ionisationsheizung, also der Eintrag von Restenergie aus der Photoionisation, die dadurch plötzlich zur wesentlichen Quelle der thermischen Energie im Nanoplasma wird [19, 20].

Diese wellenlängenabhängigen Ionisations- und Plasmaprozesse beeinflussen maßgeblich die Expansion des Clusters.

### Ladungsgetrieben oder hydrodynamisch

Aber welche Expansionsprozesse sind tatsächlich relevant, und unter welchen Voraussetzungen finden sie statt? Zwei wichtige Grenzfälle lassen sich unterscheiden: Einerseits tritt eine reine Coulomb-Explosion auf, wenn alle bei der Ionisation freigesetzten Elektronen den Cluster verlassen. In diesem Fall bestimmt die potentielle Energie der positiv geladenen und sich gegenseitig abstoßenden Ionen die Expansion und führt zu einer selbstähnlichen Entwicklung des Dichteprofiles, das heißt der Abstand zwischen den Ionen wächst überall gleichmäßig (Abb. 3a). Andererseits expandiert der Cluster rein hydrodynamisch, wenn fast alle von den Atomen abgelösten Elektronen im Cluster gebunden bleiben und der Cluster durch den thermischen Druck dieser gefangenen Elektronen auseinander getrieben wird (Abb. 3b). Im Grenzfall der hydrodynamischen Expansion steckt die Energie, die den Cluster zerstört, zunächst in der kinetischen Energie der Elektronen. Der Energieübertrag erfolgt an der Oberfläche des Nanoplasmas und führt so vor allem zu einem schichtweisen Abplatzen der Oberfläche. In der Realität liegen meist Mischzustände vor, bei denen der Cluster zwar eine beträchtliche Ladung angesammelt hat, aber dennoch Elektronen im Nanoplasma gefangen hält. Tendenziell dominiert für kleine Cluster und bei kurzer Anregungswellenlänge die Coulomb-Explosion, während bei langer Wellenlänge und für große Cluster eher die hydrodynamische Expansion vorherrscht, weil hier nur ein sehr kleiner Prozentsatz der Elektronen den Cluster verlassen kann.

### Einzelne Cluster im Visier

Ein zentraler Punkt für erfolgreiche Untersuchungen mit intensiven Röntgenpulsen ist die Möglichkeit, einzelne Cluster zu beobachten. Der kurzweilige Puls fungiert als eine Art „Röntgenmikroskop“, welches das kurze Leben eines Clusters ins Visier nimmt. Erstmals erlaubt es ultraschnelle Röntgenstreuung, die genaue Form und Struktur von Nanoteilchen in der Gasphase zu untersuchen. Diese Teilchen lassen sich entweder gar nicht auf eine feste Unterlage aufbringen (z. B. supraflüssige Helium-Nanotropfchen [21, 22]), oder sie verändern sich beim Kontakt qualitativ (z. B. Metallnanopartikel [23]). Für andere hochauflösende Verfahren wie Elektronenmikroskopie wäre es unumgänglich, die Teilchen auf einer Unterlage zu fixieren.

Die Röntgenpulse treffen auf den einzelnen Cluster und werden kohärent und im Wesentlichen elastisch gestreut, sodass ein charakteristisches Streubild entsteht (Abb. 4). Ein kuglunder Cluster führt beispiels-

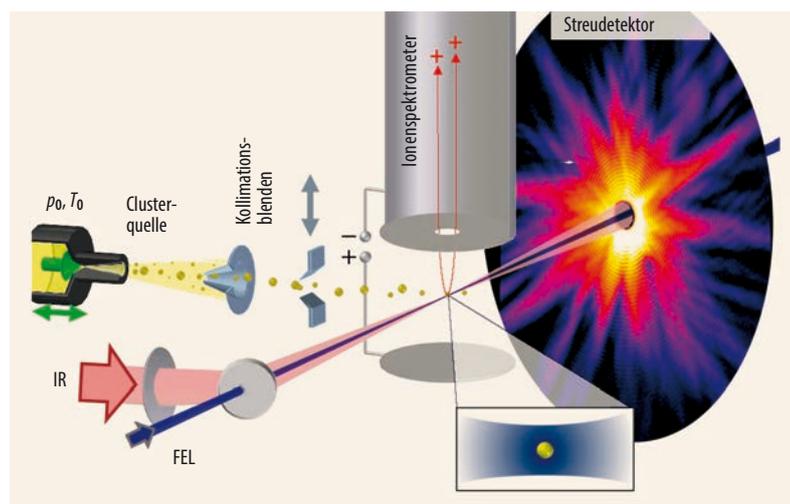


Abb. 4 Die Cluster entstehen in einem Düsenstrahl mit Druck  $p_0$  und Temperatur  $T_0$ . Blenden kollimieren den Strahl so, dass sich immer ein einzelner Cluster im Fokus befindet. Infrarot-Laserpulse können zur Anregung des Clusters eingebracht werden. Das Streubild entsteht durch die Wechselwirkung mit den Röntgenpulsen des Freie-Elektronen-Lasers, während ein Ionenspektrometer die Fragmente des Clusters detektiert. Das gestreute Licht trifft auf den Streudetektor, durch dessen zentrale Bohrung der ungestreute Strahl austritt.

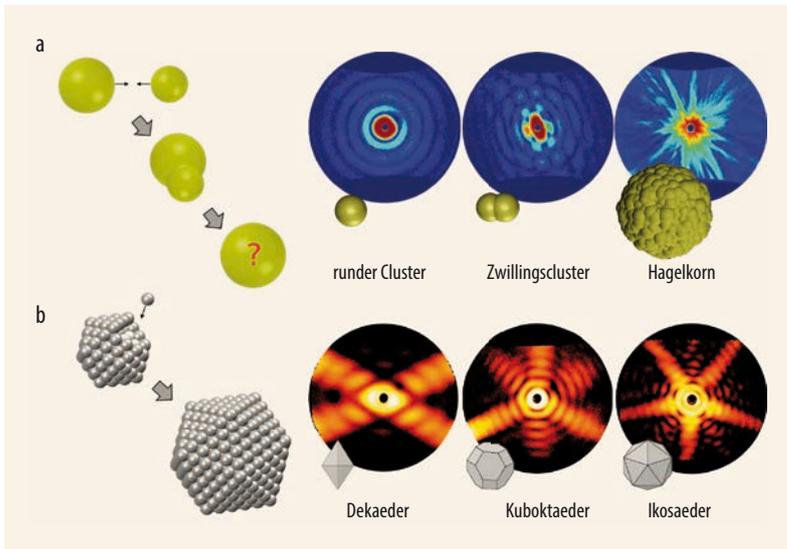


Abb. 5 Edelgascluster aus einer Düsenstrahllexpansion wachsen durch das Zusammenlagern kleinerer Cluster zu größeren (a). Metallcluster entstehen z. B. in einer Magnetronsputterquelle [27] und

wachsen durch die Anlagerung einzelner Atome. Daher bleiben die Strukturen der frühen Wachstumsphase erhalten (b). Die Streubilder spiegeln die unterschiedlichen Geometrien wider.

weise zu Ringstrukturen, wobei das Ausfransen der Ringe bei großen Clustern davon zeugt, dass deren Oberfläche nicht glatt ist [24]. Diese Strukturinformation ist prinzipiell über eine Fourier-Transformation mit dem gemessenen Streubild verknüpft. Die Herausforderung besteht in der Lösung des so genannten Phasenproblems und der Rekonstruktion der Struktur: Die Detektoren weisen nur eine Intensitätsverteilung nach, also weder die Amplituden noch die komplexe Phaseninformation der gestreuten Strahlung. Erst aufwändige Rekonstruktionsverfahren und Simulationen ermöglichen es, aus den Streubildern die zugrundeliegenden Strukturen zu bestimmen.

Die in FLASH-Experimenten beobachteten Formen erlauben beispielsweise Rückschlüsse auf den Wachstumsprozess des Clusters. Im Fall von Xenonclustern treten neben sphärischen Teilchen auch hantelförmige Zwillingcluster und hagelkornartige Strukturen auf

(Abb. 5a). Diese Strukturen wachsen durch Koagulation: Kleine Cluster ballen sich zusammen oder lagern sich an einen bestehenden Cluster an [24, 25]. Hingegen werden an Silberclustern sehr regelmäßige Körper beobachtet (Abb. 5b). Diese Formen sprechen für ein langsames Wachsen, bei dem sich Atom für Atom anlagert. Zudem ist die Formenvielfalt ein Beweis des „Strukturgedächtnisses“ in diesem Wachstumsprozess [26]. Formen mit fünfzähliger Symmetrie wie das Ikosaeder entsprechen beispielsweise nur bei sehr kleinen Clustern dem energetischen Grundzustand, während sehr große Cluster eine nahezu sphärische Kuboktaederform annehmen sollten. Wenn unter realen Wachstumsbedingungen neben den energetisch günstigsten Strukturen nicht ganz so „stabile“, aber hochsymmetrische Formen entstehen, müssen die komplexen Wachstumsprozesse metastabilen Charakter haben. Damit sind die individuellen Formen und Größen der beobachteten Cluster aber nicht reproduzierbar, sodass es notwendig ist, aus einem einzigen Streubild ihre dreidimensionale Struktur zu extrahieren. Das ist nur möglich, wenn die Intensität der Streubilder einen weiten Raumwinkel deutlich über 10° abdeckt [26]. Im Experiment ist es dazu erforderlich, weiche Röntgenstrahlung oder extrem ultraviolette Strahlung zu verwenden.

### Mehr Information aus größerem Winkel

Die Wellenlänge des gestreuten Lichts bestimmt, welche Informationen im Streubild enthalten und somit zur Rekonstruktion der Objektstruktur verfügbar sind [26]. Harte Röntgenstrahlung mit Wellenlängen im Ångström-Bereich bildet auch atomare Strukturen ab. Wellenlängen größer 1 nm lösen diese „Feinstruktur“ nicht mehr auf: In der theoretischen Beschreibung des Streuproblems darf dann in guter Näherung über die atomare Struktur gemittelt werden (Kontinuumsbeschreibung). In dieser Situation entscheidet der Streuwinkel der beobachteten Signale darüber, ob sich

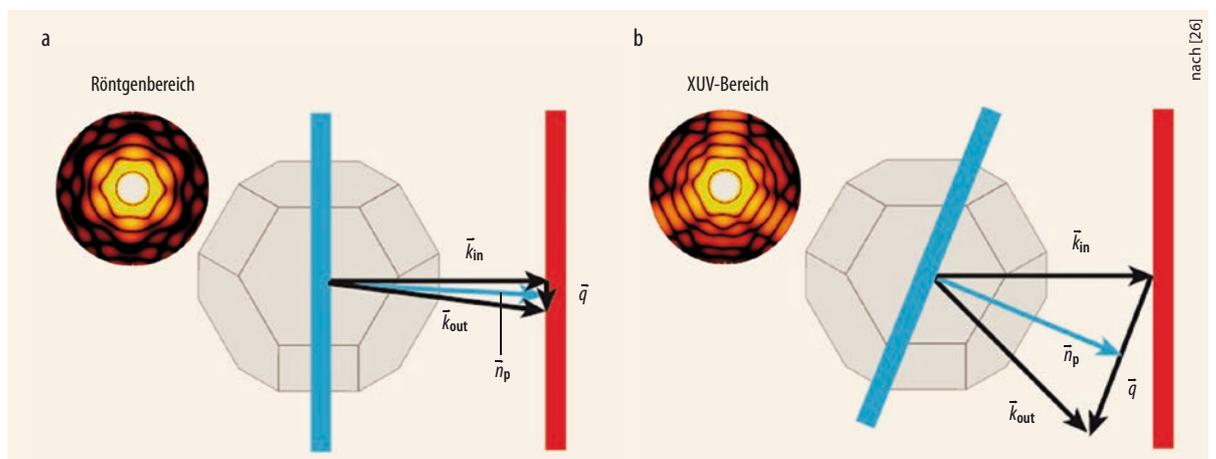


Abb. 6 Bei der Kleinwinkelstreuung von Röntgenlicht entspricht das Streubild einer zweidimensionalen Projektion der Elektronendichte des Streukörpers auf

eine einzige, durch  $\vec{n}_p$  gegebene Ebene (a). In die Weitwinkelstreuung von extrem ultraviolettem Licht gehen aber auch Tiefeninformationen ein. Für ein

einziges Streubild spielen Projektionen auf viele, gedrehte Ebenen eine Rolle und die Streubilder verlieren dabei ihre punktsymmetrische Struktur (b).

aus dem Streubild zwei- oder dreidimensionale Informationen über die Dichteverteilung des Objekts extrahieren lassen (Abb. 6).

Grundsätzlich gilt, dass die Streuintensität stark mit dem Streuwinkel abnimmt oder genauer gesagt mit dem Impulsübertrag  $q$ , der den Unterschied zwischen ein- und auslaufendem Wellenvektor beschreibt. Oberhalb eines bestimmten Wertes von  $q$  kann nicht mehr genügend Streulicht detektiert werden. Je nach Wellenlänge liegt diese Grenze bei einem anderen Winkel. Für die kurzen Wellenlängen von Röntgenlicht können typischerweise nur Streubilder bis zu einem Winkel von einigen Grad aufgezeichnet werden, dagegen reicht das messbare Streubild im extrem ultravioletten Bereich oftmals bis  $45^\circ$ .

Ein Streubild wird mathematisch als Fourier-Transformation der Elektronendichte des Streukörpers berechnet. Wird gestreutes Licht nur unter kleinen Winkeln gemessen, spielt nur die auf eine Ebene senkrecht zum Strahl projizierte Dichte eine Rolle, und die mathematische Beschreibung des Streubilds reduziert sich auf die zweidimensionale Fourier-Transformation dieser projizierten Dichte (Abb. 6a). Kann das gestreute Licht dagegen bis zu hohen Winkeln deutlich über  $10^\circ$  gemessen werden, enthält das Streubild Informationen von Projektionen auf gedrehte Ebenen, also tomographische Information über die dreidimensionale Struktur (Abb. 6b). Dieser qualitativ höhere Informationsgehalt des Weitwinkelstreubilds ist daran zu erkennen, dass die Punktsymmetrie der Kleinwinkelstreuung verloren geht, die eine charakteristische Eigenschaft der zweidimensionalen Fourier-Transformation ist. Diese Überlegungen verdeutlichen, dass im Weitwinkelbereich die Streustrahlung einem Blick auf das Objekt aus unterschiedlichen Perspektiven entspricht – anhand einer einzigen Abbildung!

Die wertvolle dreidimensionale Information erkaufte man sich teuer, da bislang keine effizienten Rekonstruktionsverfahren im Weitwinkelbereich bekannt sind, um aus den Streubildern die Teilchenstruktur zu bestimmen. Der Grund dafür ist, dass die etablierten Verfahren alle auf der für Kleinwinkelstreuung zulässigen Projektionsnäherung basieren. Eine konzeptionell einfache, aber aufwändige Möglichkeit besteht darin, die Teilchengometrie zu parametrisieren und die zugehörigen Streubilder zu berechnen. Durch systematisches Variieren der Parameter kann das Ergebnis der Rechnung dann an die Messung angepasst werden und liefert letztlich die zugrundeliegende Struktur [22, 26].

### Sortiert nach Größe und Intensität

Das detaillierte Wissen über Form und Größe des einzelnen Clusters im Fokus des Röntgenlasers ist für die Untersuchung der Wechselwirkung zwischen Röntgenpuls und Materie sehr nützlich. Denn die Streubilder der einzelnen Cluster erlauben es, die Explosionsfragmente – Ionen, Elektronen oder Fluoreszenzlicht – nach der ursprünglichen Größe des Clusters und der

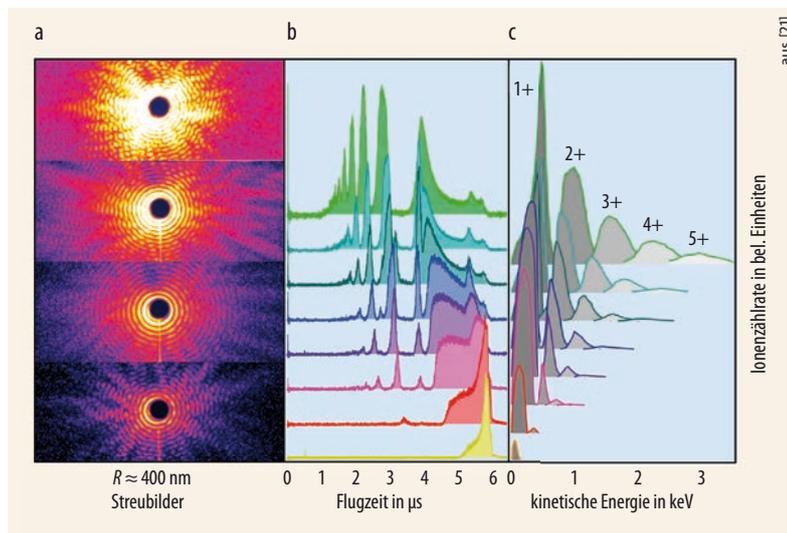


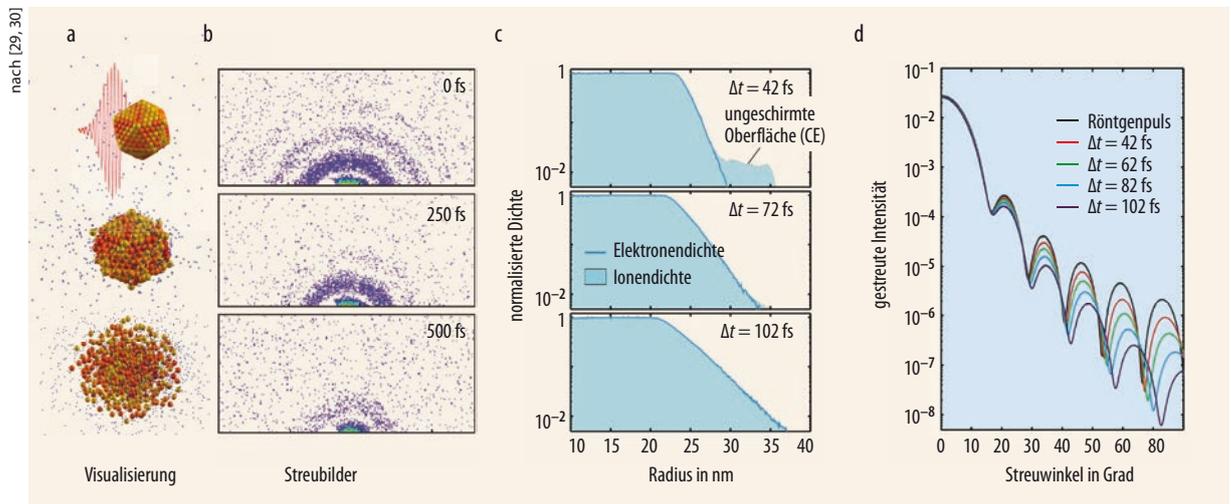
Abb. 7 Die Streubilder von Xenonclustern werden heller, wenn die Intensität des Röntgenblitzes wächst (a). Zum hellsten Streubild (oben) gehört ein Ionenspektrum (b), in dem fünfmal und höher positiv geladene Ionen nachge-

wiesen werden können, während bei der geringsten Intensität (unten) ausschließlich einfach geladene Ionen vorliegen. Die Zählrate der Ionen als Funktion der kinetischen Energie (c) zeigt separierte Verteilungen hoher Energien.

Intensität des Röntgenblitzes zu sortieren [28]. Bisher war es nur in der Theorie möglich, eine bestimmte Clustergröße bei einer definierten Laserintensität zu betrachten, da im realen Experiment immer Größenverteilungen von einer Intensitätsverteilung beleuchtet wurden. Durch die größen- und intensitätsselektive Analyse der Streubilder (Abb. 7a) und simultan gemessener Ionensignale (Abb. 7b) kann nun beispielsweise der Einfluss der Rekombination auf die Clusterdynamik untersucht werden. So zeigen die kinetischen Energien der Ionen von unterschiedlich stark getroffenen Clustern (Abb. 7c) im Mittel bis zu mehr als eine Größenordnung höhere kinetische Energien, als eine Abschätzung ohne Rekombination vorhersagt. Nur atomistische Rechnungen, welche die korrelierte Vielteilchendynamik berücksichtigen und somit Rekombinationseffekte enthalten, können die größen- und intensitätsselektiven Effekte erklären [29].

### Veränderung in Femtosekunden

Dank der kurzen Pulse bietet sich FEL-Strahlung an, um den zeitlichen Ablauf verschiedenster Prozesse im Detail aufzuzeichnen. Mit einem intensiven Infrarot-Laser werden Cluster ionisiert und aufgeheizt. Zeitlich leicht verzögert bildet der Röntgenpuls die Cluster auf den Streudetektor ab. Solche Experimente wurden an großen Xenonclustern durchgeführt und zeigen, wie sich diese auf einer Zeitskala von wenigen Femtosekunden drastisch verändern. Die am Röntgenlaser LCLS in Stanford (Linac Coherent Light Source) mit der Pump-Probe-Technik gemessenen Streubilder zeigen für verschiedene Verzögerungen überraschende Ergebnisse [30]. Bereits innerhalb weniger hundert Femtosekunden klingen die Ringstrukturen im Streubild ab – das eigentliche Streusignal verschwindet



**Abb. 8** Nach der Beleuchtung durch einen intensiven Infrarot-Laserpuls entsteht ein Plasma im gesamten Cluster, dessen Oberfläche abdampft oder abplatzt (a). In den Streubildern großer Xenoncluster verschwinden die Ringstrukturen mit zunehmendem Ab-

stand zwischen dem IR-Laserpuls und dem abbildenden FEL-Röntgenpuls (b). Theoretische Rechnungen zeigen, dass der Clusterkern schrumpft, während eine im Zerfall begriffene Schale anwächst. In dieser Rechnung für leichtere Materialien braucht die Dynamik verglichen mit

dem Experiment weniger Zeit (c). Die Streuprofile, d. h. die Schnitte durch das Streubild vom Zentrum zum Rand, bestätigen, dass die Intensität bei großen Streuwinkeln abnimmt und die Abstände der Ringe sich vergrößern, wenn der dichte Kern schrumpft (d).

also (Abb. 8b). Als Ursache dafür kommt das schnelle Aufweichen der Clusteroberfläche infrage (Abb. 8a). Eine theoretische Untersuchung deutet zudem einen Widerspruch an: Die Cluster scheinen zu schrumpfen, anstatt sich – wie nach einer intensiven Bestrahlung erwartet – auszudehnen [31]. Eine genauere Analyse zeigt, dass die Ringe im Streubild im Wesentlichen die Größe des Clusterkerns abbilden (Abb. 8c,d). Obwohl sich der gesamte Cluster in ein Plasma verwandelt hat, ändert sich die Dichte in seinem Kern aufgrund effektiver Abschirmung nur wenig, während die oberflächenschicht ungeordnet abdampft oder abplatzt. Nach einigen Pikosekunden ist der Kern dadurch so weit geschrumpft, dass sich der Cluster nahezu vollständig auflöst. Weitere Pump-Probe-Experimente an FLASH zeigten, wie sich der Cluster schließlich in einen aufgeblähten Gasball mit ausgeprägten Dichtefluktuationen verwandelt [32]. Gemeinsam bilden die Experimente vollständig das kurze Leben des Clusters von der Anregung bis zum Zerfall ab.

### Dynamik entschlüsseln

Auch in zukünftigen zeitaufgelösten Streuexperimenten an Clustern besteht eine zentrale Herausforderung darin, die Plasmadynamiken anhand der Signaturen im Streusignal zu entschlüsseln. Ein vielversprechender Ansatz ist der Vergleich der Streubilder mit Simulationen, welche die Anregung und den Streuprozess vollständig beschreiben. Dabei lassen sich die relevanten Stoßprozesse und Korrelationseffekte nur erfassen, wenn es gelingt, die Plasmadynamik atomistisch und den Streuprozess elektrodynamisch zu beschreiben. Die kürzlich entwickelte „microscopic particle-in-cell“-Methode erfüllt diese Anforderungen selbst für extrem große Systeme wie die hier diskutierten Xenon-

und Metallcluster und erlaubt es dann, vollständige Pump-Probe-Experimente zu simulieren [31].

Gegenwärtig handelt es sich hierbei um reine Grundlagenforschung. Mit Hilfe kurzer Röntgenpulse lassen sich erstmals einzelne Nanopartikel quasi im freien Flug dreidimensional abbilden. Dies ermöglicht es, dynamische Prozesse mit höchster zeitlicher und räumlicher Auflösung zu studieren. Verbesserte Lichtquellen können die Tür zum Attosekundenbereich aufstoßen und ultraschnelle Elektronendynamik detailliert sichtbar machen. Auch höhere Harmonische aus Höchstleistungslasern können als Lichtquellen dienen [22]. Während sich biologisch motivierte Strukturuntersuchungen mit FEL-Pulsen meist auf Viren und Makromoleküle konzentrieren, sind aus physikalischer und technologischer Sicht besonders die Struktur und Dynamik von Nanopartikeln mit individuellen Formen interessant. Sie spielen in vielen komplexen dynamischen Prozessen eine zentrale Rolle, beispielsweise bei der Entstehung von Suprafluidität oder in Wachstumsprozessen. Nur die Weitwinkelstreuung erlaubt es, mit einer einzigen Abbildung die dreidimensionale Struktur der Teilchen zu bestimmen.

Weitere spannende Entdeckungen sollten mit dem European XFEL folgen: Der weltweit leistungsfähigste Röntgen-FEL wurde Anfang September eingeweiht und erstreckt sich vom DESY-Gelände in Hamburg bis nach Schleswig-Holstein. Seine extrem hohe Repetitionsrate wird weitere Anwendungsfelder eröffnen.<sup>\*)</sup>

Die hier geschilderten Arbeiten sind nur im Rahmen größerer Kollaborationen möglich. Wir danken allen Kolleginnen und Kollegen, die dazu beigetragen und damit viele Ergebnisse erst möglich gemacht haben, ganz herzlich, insbesondere Tais Gorkhova (PULSE, SLAC National Accelerator Laboratory), Ingo Barke (Universität Rostock) und Christoph Bostedt (Argonne National Laboratory und Northwestern University Chicago) sowie den Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern der FEL-Anlagen bei DESY, SLAC und ELETTRA.

\*) Vgl. Physik Journal, Oktober 2017, S. 26

Literatur

[1] J. Feldhaus et al., Physik Journal, April 2008, S. 37  
 [2] E. Allaria et al., Nat. Photonics **6**, 699 (2012)  
 [3] C. Bostedt et al., J. Phys. B **46**, 164003 (2013)  
 [4] K. J. Gaffney und H. N. Chapman, Science **316**, 1444 (2007)  
 [5] B. Ziaja et al., New J. Phys. **14**, 115015 (2012)  
 [6] A. A. Sorokin et al., Phys. Rev. Lett. **99**, 213002 (2007)  
 [7] C. Bostedt et al., J. Phys. B **43**, 194011 (2010)  
 [8] U. Saalmann et al., J. Phys. B **39**, R39 (2006)  
 [9] T. Fennel et al., Rev. Mod. Phys. **82**, 1793 (2010)  
 [10] H. Wabnitz et al., Nature **420**, 482 (2002)  
 [11] R. Santra und C. Green, Phys. Rev. Lett. **91**, 0233401 (2003)  
 [12] U. Saalmann, J. Phys. B **43**, 194012 (2010)  
 [13] C. Siedschlag und J. M. Rost, Phys. Rev. Lett. **93**, 043402 (2004)  
 [14] U. Zastraub et al., Phys. Rev. Lett. **112**, 105002 (2014)  
 [15] T. Ekeberg et al., Phys. Rev. Lett. **114**, 098102 (2015)  
 [16] I. Last und J. Jortner, Phys. Rev. A **62**, 013201 (2000)  
 [17] C. Bostedt et al., Phys. Rev. Lett. **100**, 133401 (2008)  
 [18] T. Ditmire et al., Nature **398**, 489 (1999)  
 [19] M. Arbeiter und T. Fennel, Phys. Rev. A **82**, 013201 (2010)  
 [20] M. Arbeiter und T. Fennel, New J. Phys. **13**, 053022 (2011)  
 [21] L. F. Gomez et al., Science **345**, 906 (2014)  
 [22] D. Rupp et al., Nat. Commun. **8**, 493 (2017)  
 [23] A. Volk et al., J. Chem. Phys. **138**, 214312 (2013)  
 [24] D. Rupp et al., J. Chem. Phys. **141**, 044306 (2014)  
 [25] D. Rupp et al., New J. Phys. **14**, 055016 (2012)  
 [26] I. Barke et al., Nat. Commun. **6**, 4648 (2015)  
 [27] H. Haberland et al., Zeitschr. für Phys. D **20**, 413 (1991)  
 [28] T. Gorkhover et al., Phys. Rev. Lett. **108**, (2012) 245005  
 [29] D. Rupp et al., Phys. Rev. Lett. **117**, 153401 (2016)  
 [30] T. Gorkhover et al., Nat. Photon. **10**, 93 (2016)  
 [31] C. Peltz et al., Phys. Rev. Lett. **113**, 133401 (2014)  
 [32] L. Flückiger et al., New J. Phys. **18**, 043017 (2016)

DIE AUTOREN

**Daniela Rupp** (FV Atomphysik) hat in Augsburg, Sevilla und Berlin Physik studiert und 2013 zur die Ionisationsdynamik von Clustern in intensiven Röntgenpulsen promoviert. Nach einer Postdoc-Phase an der TU Berlin leitet sie seit 2017 eine Leibniz-Nachwuchsgruppe am Max-Born Institut Berlin und erforscht die Struktur und Entwicklung hochangeregter Plasmazustände auf der Nanoskala.



**Thomas Fennel** (FV Atomphysik und FV Kurzzeitphysik) hat in Rostock Physik studiert und promoviert. Nach Forschungsaufenthalten in Seattle und Ottawa leitete er ab 2010 in Rostock eine Nachwuchsgruppe und ist seit 2017 Heisenberg-Stipendiat am Max-Born Institut Berlin und an der U Rostock. Er entwickelt theoretische Methoden zur atomistischen Beschreibung der Vielteilchendynamik und Lichtausbreitung in endlichen Systemen.



**Thomas Möller** (FV Atomphysik) hat Physik und Astronomie an der U Hamburg studiert, dort 1986 promoviert sowie 1991 habilitiert. 2001 führte seine Arbeitsgruppe am DESY die ersten Experimente an einem Freie-Elektronen-Laser für Röntgenstrahlung durch. Seit 2004 ist er Professor für Experimentalphysik mit Schwerpunkt Röntgenphysik an der TU Berlin und untersucht vor allem die vielfältigen Eigenschaften von Nanoteilchen.

