

Atom mit spin-up und eines mit spin-down jeden Gitterplatz besetzte. Nach der Präparation wurde bei diesen isolierten Zwei-Teilchen-Systemen der Uhrenübergang $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ angeregt und mittels hochpräziser Spektroskopie untersucht. Aus den resultierenden Wechselwirkungsverschiebungen und Aufspaltungen der Linien war es möglich, die Austauschwechselwirkung zu extrahieren und zu quantifizieren (Abb. 1).

Mithilfe von Magnetfeldern und Laserpulsen, die mit dem Uhrenübergang resonant waren, erzeugten die Forscher in einem weiterführenden Experiment an jedem Gitterplatz einen Überlagerungszustand aus zwei orbitalen und zwei Spinzuständen $|e\ g^\pm\rangle \propto (|g^\uparrow, e^\downarrow\rangle \pm |g^\downarrow, e^\uparrow\rangle)$. Anschließend beobachteten sie kohärente Oszillationen in den Besetzungen zwischen den Spinzuständen $|g^\uparrow\rangle$ und $|g^\downarrow\rangle$ (Abb. 2). Da die Oszillationen ohne vorherige Überlagerung verschwanden, ließen sie sich eindeutig der interorbitalen Austauschwechselwirkung zuordnen. Aus der Oszillationsfrequenz extrahierten die Forscher anschließend erneut

den Wert für die Austauschwechselwirkung. Beeindruckend bei diesen Messungen war vor allem die Kohärenzzeit der Oszillation relativ zur Stärke der Kopplung.

Die Experimente in Florenz und München bilden einen überaus vielversprechenden Ausgangspunkt, um neue stark korrelierte Vielteilchensysteme mit Yb-Atomen zu untersuchen. Würde man in einem ähnlichen Experiment beispielsweise Tunneln zwischen den einzelnen Gitterplätzen erlauben, hätte man direkt ein Quantengas-Analogon des Kondo-Gitters oder Kugel-Khomskii-Modells realisiert. Unter Verwendung der bis zu sechs verschiedenen Spinzustände von ^{173}Yb ergeben sich sogar ganz neue experimentelle Möglichkeiten, um multi-orbitale Modelle mit $SU(N)$ -symmetrischer Wechselwirkung zu realisieren, wie sie bereits in kalten Quantengasen ohne orbitalen Freiheitsgrad studiert wurden [5–7]. Damit würde man Zugriff auf exotische Quantenphasen oder Spinflüssigkeiten erlangen, die in der Natur nicht realisiert sind.

Christoph Becker und Klaus Sengstock

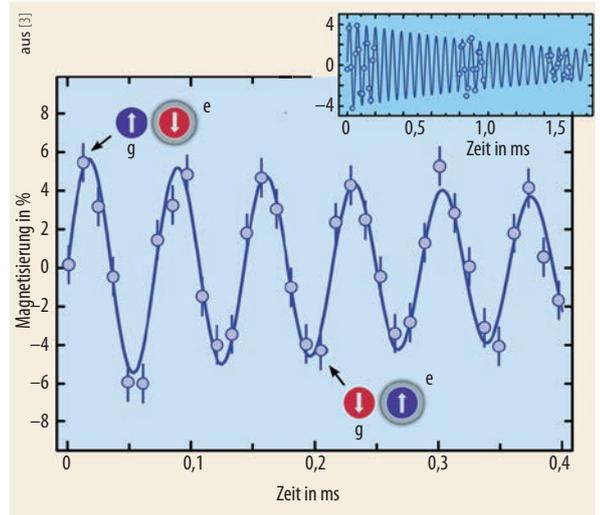


Abb. 2 Aus diesen kohärenten Grundzustands-Spinzustände $|g^\uparrow\rangle$ und $|g^\downarrow\rangle$. Im Inset ist das Abklingen der Oszillationen über einen längeren Zeitraum zu erkennen.

[1] A. V. Gorshkov et al., Nature Physics **6**, 289 (2010)
 [2] A. Derevianko und H. Katori, Rev. Mod. Phys. **83**, 331 (2011)
 [3] G. Cappellini et al., Phys. Rev. Lett. **113**, 120402 (2014)
 [4] F. Scazza et al., Nature Physics **10**, 779 (2014)
 [5] S. Taie et al., Nature Physics **8**, 1 (2012)
 [6] X. Zhang et al., Science **345**, 1467 (2014)
 [7] G. Pagano et al., Nature Physics **10**, 198 (2014)

Dr. Christoph Becker, Prof. Dr. Klaus Sengstock, Institut für Laserphysik, Universität Hamburg, Luruper Chaussee 149, 22761 Hamburg

Schnappschuss in 3D

Die räumliche Struktur eines Nanokristalls lässt sich bereits aus einer einzelnen atomar aufgelösten elektronenmikroskopischen Aufnahme gewinnen.

Nanoteilchen zeigen oft ganz andere physikalische Eigenschaften als die entsprechenden makroskopischen Kristalle. Das nutzte man bereits im Mittelalter: Die verschiedenen Farben von Kirchenfenstern verdanken wir unterschiedlich großen Gold-Nanopartikeln. Eine moderne Anwendung für metallische Nanopartikel ist die heterogene Katalyse, deren Effektivität entscheidend von Größe und Oberflächenstruktur der Partikel abhängt. Für ein genaues Verständnis ist es unerlässlich, die detaillierte Struktur der Nanoteilchen zu ermitteln. Hier hat sich die Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (TEM) etabliert. Allerdings liefert diese im

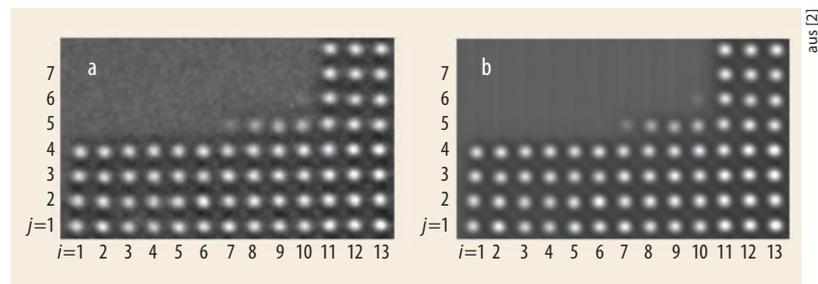


Abb. 1 Ausschnitt aus der elektronenmikroskopischen Aufnahme eines MgO-Partikels, das mit einem aberrationskorrigierten Transmissions-Elektronen-Mikroskop in [001]-Richtung durchstrahlt wurde (a): Die hellen Punkte entsprechen den projizierten Atomsäulen. In den oberen

Reihen sind deutlich Helligkeitsunterschiede zu sehen, die durch atomare Stufen verursacht sind. Die Atomsäulen sind durch die Zahlentupel (i, j) indiziert. Die Bildsimulation (b) mit angefitzten Abbildungsparametern hat dieselbe Intensitätsskala wie das TEM-Bild.

Wesentlichen nur die Projektion der Struktur entlang der Einstrahlrichtung. Wesentlich aufschlussreicher ist die dreidimensionale

Struktur der Nanopartikel. Dafür kommt die Elektronentomographie zum Einsatz: Aus Aufnahmen bei unterschiedlicher Verkipfung des

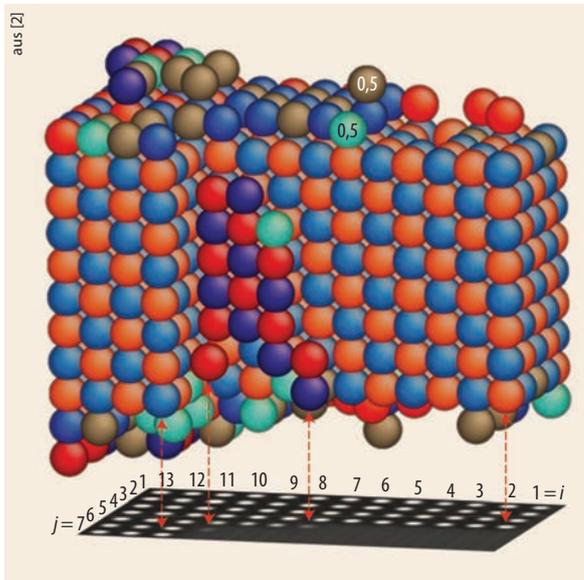


Abb. 2 Das Ergebnis des Fits liefert den dreidimensionalen atomaren Aufbau des Bereichs aus Abb. 1a. Die roten Kugeln stellen vollbesetzte Positionen von Mg, die blauen Kugeln die von O dar. Atome an der Oberfläche sind durch kräftigere Farben gekennzeichnet. Formal halbbesetzte Positionen in den Oberflächenschichten sind durch braune (Mg) bzw. grüne Kugeln (O) angezeigt.

Präparats lässt sich seine dreidimensionale Struktur rekonstruieren. Allerdings sind dafür sehr viele Aufnahmen nötig. Das hat eine hohe Elektronendosis zur Folge, die insbesondere empfindliche biologische Proben zu stark schädigt. Bei diesen kam die Elektronentomographie daher nur im Bereich mittlerer Auflösungen zum Einsatz.

Die notwendige Strahlendosis lässt sich aber reduzieren, wenn für die Rekonstruktion Zusatzinformationen über das Präparat

zur Verfügung stehen, etwa die Periodizität des Kristallgitters bei kristallinen Proben. 2011 gelang es, Elektronentomographie an einem kleinen Kristalliten im Bereich atomarer Auflösungen durchzuführen [1]. Dabei wurde angenommen, dass sich alle Atome auf einem diskreten Gitter befinden, sodass zwei Aufnahmen entlang verschiedener Zonenachsen genügen. Allerdings gilt es dabei, die beiden Einstrahlrichtungen mit großer Genauigkeit zu orientieren.

Aufgrund der Tiefenschärfe kann jedoch bereits die Intensitätsverteilung in einer einzigen TEM-Aufnahme Informationen über die Position der Atome in Strahlrichtung enthalten. Das konnte ein Team deutscher und chinesischer Forscher kürzlich zeigen [2]. Sie nutzten die schwache Abhängigkeit des Intensitätsprofils von der Position eines Atoms in Strahlrichtung (z -Achse), um damit die dreidimensionale Struktur eines Magnesiumoxid-Nanokristalls aus einer einzelnen Aufnahme zu ermitteln. Dafür ist es zunächst erforderlich, die Abbildungsbedingungen so zu wählen, dass die Intensitätsverteilung im Bild möglichst empfindlich auf kleine Änderungen der Atompositionen reagiert, insbesondere auf deren Lage in Strahlrichtung. Ausgehend von einem ersten Modell und den elektronenoptischen Abbildungsparametern wird dann das zugehörige Bild simuliert.

Anhand eines Vergleichs mit den Messdaten lassen sich die Struktur- und Abbildungsparameter iterativ verfeinern. Der Vergleich basiert dabei auf der Messung der absoluten Intensitäten [3]. Abschließend gilt es, die Ergebnisse auf ihre Eindeutigkeit und statistische Signifikanz zu überprüfen, indem der Verfeinerungsschritt mit unterschiedlichen Startwerten durchlaufen wird. Darüber hinaus bestimmt man die Abweichungen im Bild als Funktion leicht geänderter Atompositionen und daraus die zugehörigen „Fehlerbalken“.

Magnesiumoxid (MgO) ist ein gutes Modellsystem für eine Verbindung aus leichten Elementen, die sich in ihren Ordnungszahlen nur wenig unterscheiden. Sie ist darüber hinaus, insbesondere im Vergleich zu Metallen, strahlenempfindlich. Zur Abbildung der atomaren Struktur eignet sich der Phasenkontrast besonders gut [4].¹⁾ Auf diese Weise erhielten Jia et al. ein Bild, in dem die hellen Punkte ungefähr den Positionen der Mg-O-Atomsäulen entsprechen (Abb. 1a). Auffällig sind die Helligkeitsunterschiede der Punkte ab der fünften Reihe von unten ($j=5$), die von einer lokal unterschiedlichen Dicke herrühren. Die Forscher bestimmten mit einer Simulationsrechnung aus dem Gesamtbild zunächst die Abbildungsparameter, wie die mittlere Dicke und die Kippung der Proben sowie die optischen

KURZGEFASST

■ Kooperativ verschoben

Gemäß der Quantenelektrodynamik führt der Austausch virtueller Photonen in einem System aus identischen Quantenemittern zu einer Verschiebung der Energieniveaus. Diese kollektive Lamb-Verschiebung konnten Wissenschaftler vom Weizmann-Institut nun über eine Distanz von bis zu 40 Mikrometern nachweisen. Dazu sperrten sie Strontium-Ionen in eine Paul-Falle und reihten bis zu acht Ionen im Abstand einiger Mikrometer hintereinander auf. Die Ionen konnten demnach nur durch den Austausch von Photonen wechselwirken. Der Effekt der kollektiven Lamb-Verschiebung ist etwa 500-Mal geringer als die natürliche Linienbreite und ließ sich nur mit raffi-

nierten Tricks spektroskopisch messen. Entscheidend war es, die Position der Emitter präzise zu kontrollieren und das System möglichst gut von der Umgebung zu isolieren. Zudem war eine Integrationszeit von über acht Stunden pro Messpunkt erforderlich. Diese Erkenntnisse könnten nützlich sein für optische Präzisionsexperimente. Z. Meir et al., Phys. Rev. Lett. **113**, 193002 (2014)

■ Kohärent in Kooperation

Auf dem Weg zum Quantencomputer gilt es, geeignete Qubits zu identifizieren, die u. a. eine lange Kohärenzzeit besitzen. Vielversprechend erscheinen sog. Kooperationsverbindungen, die aus einem Metallion und organischen

Gruppen (Liganden) bestehen, da sich ihre physikalischen Eigenschaften mittels chemischer Manipulationen sehr gut maßschneidern lassen. Einer Gruppe der Universität Stuttgart ist es gelungen, eine Kohärenzzeit von 68 Mikrosekunden zu erreichen – bisherige Werte molekularer Qubits liegen bei wenigen Mikrosekunden. Die Forscher nutzten dazu eine Verbindung aus einem zentralen Kupferion, eingebettet in eine Ligandenhülle mit wenigen kernspintragenden Elementen, die die Lebensdauer verkürzen würden. Der nächste Schritt auf dem Weg zur Anwendung ist es, die Verbindung auf Oberflächen strukturiert abzuscheiden. K. Bader et al., Nature Comm., DOI: 10.1038/ncomms6304 (2014)

¹⁾ Er lässt sich im aberationskorrigierten Elektronenmikroskop durch geeignete Wahl von Defokus und Öffnungsfehler erzielen [5,6].

Parameter des Mikroskops (Abb. 1b). Danach optimierten sie die Atompositionen. Die Varianz der Intensitätswerte beträgt etwa ein Zehntel des Wertes, der bei Hinzufügen eines weiteren Atoms zu erwarten wäre. Simulationsrechnungen zeigten zudem, dass sich nicht nur die Anzahl der Atome in einer Säule, sondern auch ihre Reihenfolge (Mg-O-Mg-O bzw. O-Mg-O-Mg) anhand der Intensitätsverläufe im Bild unterscheiden lassen. Die quantitative Auswertung der Daten liefert ein Strukturmodell, das zusätzlich zu den x - y -Positionen der Atomsäulen auch die atomare Struktur der Oberflächen zeigt (Abb. 2). Dabei sind Positionen mit halber Besetzungswahrscheinlichkeit zu erkennen, die sich aufgrund weiterer Rechnungen als Kohlenstoffkontaminationen erwiesen [2].²⁾

Für die Anwendung der neuen Methode ist es erforderlich, dass die Unterschiede zwischen Bildern für verschiedene mögliche Strukturen größer sind als das „Rauschen“ in jedem einzelnen Bild, das von der Statistik der detektierten Elektronenzahl in den einzelnen Bildpunkten herrührt. Die Annahme, dass sich alle Atome auf einem diskreten Gitter befinden, erlaubt es, zwischen unterschiedlichen Atomen auf den Gitterplätzen zu unterscheiden. Dafür ist neben einem aberrationskorrigierten Elektronenmikroskop und einem guten Kamerasystem auch ein Mindestunterschied der Ordnungszahlen der beteiligten Elemente erforderlich. Wie sich nun gezeigt hat, reicht der Unterschied zwischen Mg ($Z=12$) und O ($Z=8$) aus [2].

Mit der Entwicklung neuer Techniken, wie Elektronenmikroskopie bei niedrigen Beschleunigungsspannungen und gekühlten Proben, sollten weitere Verbesserungen des neuen Verfahrens möglich sein. Besonders interessant ist die neue Methode für die Untersuchung der zeitlichen Veränderungen von Probenstrukturen, deren Rekonstruktion aus mehreren Aufnahmen naturgemäß nicht möglich ist.

Helmut Kohl

- [1] S. van Aert et al. *Nature* **470**, 374 (2011)
- [2] C. L. Jia et al., *Nature Materials* **13**, 1044 (2014)
- [3] A. Thust, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 220801 (2009)
- [4] K. Urban, *Physik. Blätter*, März 1990, S. 77
- [5] H. Rose, M. Haider und K. Urban, *Physik. Blätter*, Mai 1998, S. 411
- [6] C. L. Jia, L. Houben, A. Thust und J. Barthel, *Ultramicrosc.* **110**, 500 (2010)

2) Auf den Proben lagern sich beim Transport durch die Luft und im Vakuum (kein Ultrahochvakuum) Kohlenwasserstoffe ab, die sich unter Elektronenbeschuss in Kohlenstoff umwandeln. Darüber hinaus liegen die Proben auf dünnen Kohlenstoff-Filmen.

Prof. Dr. Helmut Kohl, Physikalisches Institut, Universität Münster, Wilhelm-Klemm-Str. 10, 48149 Münster

■ Perfektion aus Namibia

In einem natürlichen Cu_2O -Kristall ließen sich ausgedehnte Materieanregungen, sog. Rydberg-Exzitonen, mit bislang unerreichter Klarheit und Perfektion nachweisen.

In Halbleitern treten Anregungen auf, bei denen ein Elektron im Leitungsband mit einem unbesetzten Zustand im Valenzband („Loch“) über das attraktive Coulomb-Feld ein neues Quasiteilchen bildet. In Analogie zu einem Wasserstoffatom lässt sich ein solches Exziton mit dem Bohrschen Atommodell (beziehungsweise einer analogen Schrödinger-Gleichung) beschreiben. Hierbei nimmt das Loch die Rolle des Atomkerns ein. Jakow Frenkel diskutierte das Konzept des Exzitons bereits 1930 für stark lokalisierte Zustände [1]. Die Lichtemission in vielen organischen Polymeren oder Kristallen basiert auf diesen Frenkel-Exzitonen, die in der Regel bis weit über Raumtemperatur thermisch stabil sind. Gregory Wannier und Nevill Mott erweiterten 1937/38 das Konzept auf ausgedehnte Zustände, wie sie meist in anorganischen Halbleitern vorliegen [2, 3]. Diese Wannier-Mott-Exzitonen wurden 1952 von Evgenii Gross und Nury Karryjew erstmals experimentell in

Cu_2O nachgewiesen [4]. Aufgrund der modifizierten Massen der Ladungsträger im Kristall („effektive Massen“) sowie der dielektrischen Umgebung ist die Bindungsenergie von Wannier-Exzitonen im Vergleich zum Wasserstoffatom deutlich reduziert und liegt typisch im Bereich von einigen wenigen bis 100 meV (verglichen mit 13,6 eV im H-Atom). Deshalb sind diese für anorganische Halbleiter typischen Wannier-Exzitonen über viele Gitterplätze delokalisiert und oft nur bei tiefen Temperaturen zu beobachten.

In Analogie zum Wasserstoffatom hat auch ein Exziton nicht nur einen gebundenen Grundzustand, sondern – zumindest theoretisch – eine physikalisch reiche Schalenstruktur mit sukzessive abnehmenden Energieabständen. Hierbei sind Zustände mit großen Hauptquantenzahlen n von besonderem Interesse: Sie haben zum einen eine sehr große Lebensdauer im Nanosekundenbereich und sind zum anderen räumlich stark ausge-

dehnt. Diese beiden Eigenschaften machen es möglich, ausgeprägte nichtlineare Effekte bereits auf der Skala von einzelnen Exzitonen zu beobachten. Will man exzitonische Zustände in diesem Rydberg-Regime mit großen n sehr genau vermessen, ergeben sich jedoch sehr schnell Limitierungen: Anders als atomare Übergänge, deren spektrale Breite nahezu ideal nur durch ihre Lebensdauer gemäß der Energie-Zeit-Unschärfe gegeben ist ($\Delta E \cdot \Delta t \approx \hbar$), sind exzitonische Emissions- und Absorptionslinien in der Regel stark verbreitert. Neben Inhomogenitäten in der Kristallzusammensetzung liegt das an der Wechselwirkung mit Gitterschwingungen (Phononen), die das Potential der Exzitonen „stören“ und somit zu schnellen Energieschwankungen führen, sowie an der Wechselwirkung mit anderen Ladungsträgern im Kristall. Da sich die räumliche Ausdehnung von Wannier-Mott-Exzitonen im Rydberg-Regime über eine große Zahl von Gitterplätzen (bis zu meh-