

Inkohärent zum Bild

Ein Experiment am European XFEL zeigt, dass Intensitätsinterferometrie mit atomarer Fluoreszenzstrahlung möglich ist.

Adriana Pálffy-Buß



Um die Struktur kondensierter Materie zu bestimmen, ist die kohärente Röntgenbeugung seit mehr als hundert Jahren eine unverzichtbare Methode, die immer weiter entwickelt wird. Heute kommen dabei beschleunigerbasierte Röntgenquellen zum Einsatz, wie Synchrotronstrahlungsquellen und Röntgenlaser. Im Gegensatz dazu gelang es kürzlich erstmalig am European XFEL, auch inkohärente Röntgenfluoreszenzphotonen für die Bildgebung zu nutzen [1] – ein Ansatz, der zurück zu den Anfängen der Röntgenkristallographie führt. Seit der Entdeckung der Röntgenstrahlung führten verschiedene Umwege zu dieser Anwendung. So wollten die Forscher um Max von Laue 1912 Interferenzerscheinungen an Kristallen untersuchen. Dazu platzierten sie ihre Fotoplatten zunächst so, dass diese möglichst gut Fluoreszenzlicht nach der Anregung des Kristalls detektierten. Weil die Fluoreszenzphotonen keine definierte Phasenbeziehung zueinander aufweisen, kam es aber nicht zur erwarteten Interferenz – ein Umstand, auf den schon Arnold Sommerfeld hingewiesen hatte. Die Detektion gelang erst, als die Fotoplatten direkt hinter dem untersuchten Kristall standen. Nun zeigten sich charakteristische Muster, allerdings verursacht durch die kohärente Überlagerung der an

den Atomen gestreuten Röntgenwellen [2]. Dies war die Geburtsstunde der Röntgenkristallographie, für die Max von Laue nur zwei Jahre später den Nobelpreis für Physik erhielt.

Seither gilt Fluoreszenzstrahlung als ungeeignet für die Röntgenstrukturanalyse. Das trifft jedoch nur zu, wenn die Detektions- bzw. Integrationszeit des Detektors deutlich länger ist als die Emissionsdauer der Fluoreszenzphotonen, die sogenannte Kohärenzzeit. Denn in diesem Fall mittelt die Detektion über viele Emissionsprozesse. Ist die Detektionszeit deutlich kürzer als die Kohärenzzeit, sind die Emissionsprozesse interferenzfähig.

Diesen Zusammenhang wandten in den 1950er-Jahren die britischen Astronomen Robert Hanbury Brown und Richard Q. Twiss auf das Licht von Sternen an. Sie reduzierten die Detektionszeit in den Bereich der Kohärenzzeit eines schmalbandigen Ausschnitts des Sternenlichts und werteten die räumlichen Korrelationen der Intensitäten zweier getrennter Detektoren aus. Damit gelang es ihnen, die Durchmesser und die Abstände von Sternen zu bestimmen [3, 4].

Diese sogenannte Intensitätsinterferometrie beruht auf einem Zweiphotonen-Interferenzphänomen. Interferenz tritt auf, wenn zwei nicht

unterscheidbare Photonen, die von verschiedenen Punkten einer Quelle ausgehen, gleichzeitig zwei verschiedene Detektoren erreichen [5]. Damit die beiden Photonen ununterscheidbar sind, müssen ihre Eigenschaften identisch sein und ihr zeitlicher Abstand bei der Detektion innerhalb der Kohärenzzeit der Lichtquelle liegen. Inspiriert durch die Experimente von Hanbury Brown und Twiss hat Roy Glauber wenige Jahre später die Quantentheorie der Kohärenz entwickelt und damit die Quantenoptik maßgeblich vorangebracht [6, 7]. Dafür wurde er 2005 mit dem Physik-Nobelpreis ausgezeichnet.

Die Intensitätsinterferometrie auf die Röntgenstrukturanalyse anzuwenden, kam bisher nicht infrage, weil die Kohärenzzeit hier sehr kurz ist: Die Übergänge zwischen den inneren Schalen haben eine sehr kurze Lebensdauer; im Falle eines Kupferatoms mit einer Leerstelle in der K-Schale beträgt sie weniger als eine Femtosekunde. Die Photonen zweier Kupferatome erscheinen also nur dann ununterscheidbar, wenn die Detektoren sie innerhalb dieser Zeitspanne nachweisen oder wenn die Atome innerhalb dieses Zeitintervalls angeregt werden. Heute verfügbare Detektoren sind für den Nachweis zu langsam, aber die schnelle

Anregung ermöglichen seit kurzem Röntgenlaser mit Pulsdauern von Femtosekunden. Sie erlauben es, die Intensitätsinterferometrie auf die Bildgebung mit Röntgenfluoreszenzphotonen zu übertragen und dabei atomare Auflösung zu erzielen [8].

Kürzlich ist am European XFEL ein wichtiger experimenteller Schritt in diese Richtung gelungen [1]. Ein Phasengitter fokussierte den Röntgenstrahl mit einer Energie von 9 keV und einer Pulslänge von 6,2 fs auf zwei Punkte einer dünnen Kupferfolie (**Abb. 1**); dort regten die mehr als 10^9 Photonen pro Puls die Kupferatome zur Emission von K_α -Fluoreszenzstrahlung mit 8,9 keV an. Die beiden fluoreszierenden Punkte dienten als abzubildende Probe bzw. Lichtquelle. Für die Aufnahme kam ein speziell entwickelter AGIP-Detektor („Adaptive Gain Integrating Pixel detector“) zum Einsatz, der über einen großen dynamischen Bereich die Verstärkung automatisch der Strahlungsintensität anpasst. Da eine Million Pixel für den Einzelphotonennachweis vorliegen, kann der Detektor bis zu 10^{12} Korrelationen zwischen Pixelpaaren während eines einzigen Laserpulses messen.

Eine Herausforderung des Experiments bestand in der Dauer des Röntgenpulses, die etwa zehnmals länger war als die Lebensdauer des Übergangs der K_α -Emission. Das verringerte den Kontrast der Interferenzstreifen, sodass es nötig war, das Signal-zu-Untergrund-Verhältnis zu verbessern. Dazu dienten 58 Millio-

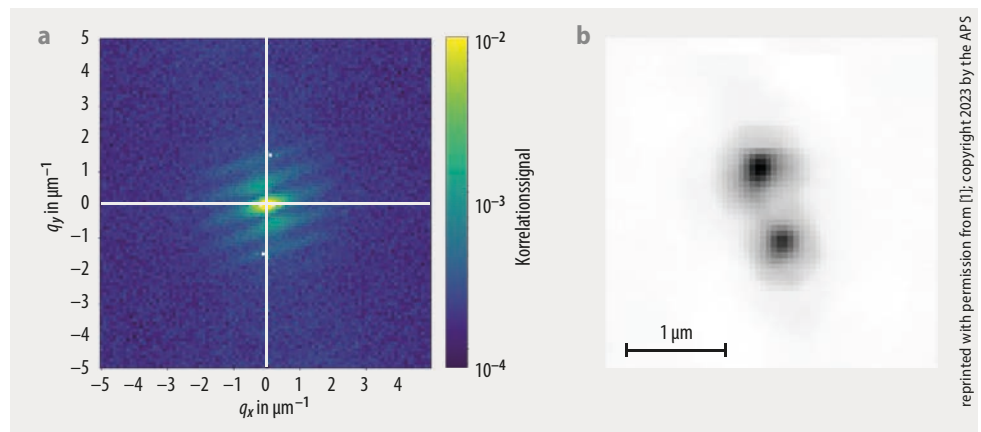


Abb. 2 Mehr als 58 Millionen Korrelationen von Röntgenfluoreszenz-Schnappschüssen ergeben eine Karte der räumlichen Frequenzverteilung der Quellen bzw. der q -Vektoren im reziproken Raum (a). Eine Analyse des Interferenzmusters mit herkömmlichen Methoden der kohärenten diffraktiven Bildgebung erzeugt ein hochauflösendes Bild der zwei beleuchteten Flecken auf der Kupferscheibe (b).

nen Fluoreszenzbilder, aufgenommen in etwa fünf Stunden. Die aufsummierte Intensität aller Bilder ergab wie erwartet ein räumlich isotropes Signal ohne strukturelle Informationen. Im Gegensatz dazu zeigte das berechnete Korrelationssignal deutlich die Zwei-Photonen-Interferenz mit Maxima bis zur dritten Ordnung (**Abb. 2a**). Um das Bild der Fluoreszenzquelle zu rekonstruieren, galt es, das erhaltene Streifenmuster zu analysieren. Das gelang mit einer Methode der kohärenten Bildgebung, die eine Fourier-Transformation und einen iterativen Algorithmus nutzte, um die Phase des Felds zu bestimmen. Damit ließen sich die Größe und der Abstand der beiden Fluoreszenzflecken auf der Kupferfolie rekonstruieren (**Abb. 2b**).

Das Experiment kehrt im Prinzip wieder zum ursprünglichen Ansatz

Max von Laues zurück und erbringt den Nachweis, dass sich Fluoreszenzstrahlung für die Bildgebung nutzen lässt – dank Femtosekunden-Röntgenquellen und ortsauflösenden Pixeldetektoren, die 1912 noch nicht zur Verfügung standen. Mit weiteren Verbesserungen lassen sich prinzipiell mit der Methode Strukturen bis hin zu atomarer Auflösung bestimmen. So wird der European XFEL in Zukunft noch kürzere Pulse zur Verfügung stellen, was die Zahl der erforderlichen Fluoreszenzbilder deutlich reduziert. Die Methode stellt eine Möglichkeit dar, um in Kombination mit kohärenter Röntgenbeugung eines Tages einzelne Moleküle abzubilden. Mittels ultrakurzer Röntgenpulse ließen sich dann elementspezifisch und zeitaufgelöst Reaktionsverläufe mit atomarer Auflösung verfolgen.

Süße Fälschungssicherheit

Ein Team des MPI für Kolloid- und Grenzflächenforschung in Potsdam-Golm hat eine Methode entwickelt, um Produktfälschung zu erschweren. Das patentierte Verfahren ermöglicht es, einzigartige, nicht kopierbare Fluoreszenzmuster schnell und preiswert zu erzeugen. Als Basis dafür dient ein dünner Zuckerfilm aus Monosacchariden. Wenn ein Laserstrahl diesen auf mehr als

500 °C erhitzt, karamellisiert der Zucker und bildet spezifische Muster mit einzigartiger Topografie. Diese zeigt sich im Fluoreszenzlicht in einmaligen Farbstufungen und erlaubt es so, die Probe mit dem Zuckerabdruck eindeutig zu identifizieren.

J. Zhang et al., Nat. Nanotechnol. (2023), DOI: 10.1038/s41565-023-01405-3



- [1] F. Trost et al., Phys. Rev. Lett. **130**, 173201 (2023); DOI: 10.1103/PhysRevLett.130.173201
- [2] M. Eckert, Ann. Phys. **524**, A83 (2012)
- [3] R. Hanbury Brown und R. Q. Twiss, Nature **178**, 1046 (1956)
- [4] R. Hanbury Brown und R. Q. Twiss, Nature **177**, 27 (1956)
- [5] U. Fano, Am. J. Phys. **29**, 539 (1961)
- [6] R. J. Glauber, Phys. Rev. **130**, 2529 (1963)
- [7] R. J. Glauber, Rev. Mod. Phys. **78**, 1267 (2006)
- [8] A. Classen et al., Phys. Rev. Lett. **119**, 053401 (2017)

Die Autorin

Prof. Dr. Adriana Pálffy-Buß, Fakultät für Physik und Astronomie, Universität Würzburg, Am Hubland, 97074 Würzburg