



Für die Starkfeldionisation von molekularem Wasserstoff zeigt die künstlerische Darstellung die Änderung der Wigner-Zeit als Funktion des Elektronenemissionswinkels relativ zur Molekülachse.

Creative Commons Attribution 4.0 International License

GUSTAV-HERTZ-PREIS

Aufschlussreiches Tunneln

Zeitlich hochaufgelöste Studien entschlüsseln die Photoionisation in starken Laserfeldern.

Sebastian Eckart

Ultrakurze Laserpulse erlauben es, die Licht-Materie-Wechselwirkung zeitaufgelöst zu untersuchen bzw. Eigenschaften von einzelnen Atomen und Molekülen gezielt auf der Femtosekunden-Skala zu manipulieren.

Photoionisation ist ein typisches Beispiel für Licht-Materie-Wechselwirkung. Sobald die Photonenenergie höher ist als das Ionisationspotential eines Atoms oder Moleküls, löst sich ein Elektron mit einer bestimmten kinetischen Energie aus seinem gebundenen Zustand. Aufgrund der Energieerhaltung muss die Summe aus kinetischer Energie des freigesetzten Elektrons und dem Ionisationspotential genau der Photonenenergie entsprechen – unter der Annahme, dass das verbleibende Ion nach der Wechselwirkung im Grundzustand ist, was oft der Fall ist. Auch Impuls und Drehimpuls müssen erhalten sein. In einem Bezugssystem, in dem das Atom oder Molekül vor der Absorption ruht, ist bei der Photoionisation der Gesamtimpuls des Photons in der Regel vernachlässigbar. Aufgrund der Impulserhaltung fliegen das Elektron und das Ion nach der Photoionisation also in entgegengesetzte Richtungen und haben exakt den gleichen Betrag des Impulses. Die Photoionisation mit einem Photon trägt der Drehimpulserhaltung dadurch Rechnung, dass das emittierte Elektron einen passenden Drehimpulszustand einnimmt.

Wenn mehr als ein Photon an der Photoionisation beteiligt ist, verkomplizieren sich diese Überlegungen [2]. Damit ein solcher Multiphotonen-Prozess stattfinden kann, müssen mehrere Photonen gleichzeitig mit dem Atom oder Molekül wechselwirken. Dafür muss die Photonen-

dichte hoch genug sein. Anschaulich bedeutet das, dass in dem Volumen, in dem sich das Atom befindet, mehrere Photonen gleichzeitig vorhanden sein müssen. Die Multiphotonenionisation findet ab einer Intensität von etwa 10^{12} W/cm² statt. Das ist etwa 10^{13} -mal höher als die Lichtintensität der Sonne auf der Erdoberfläche. Bei noch höheren Lichtintensitäten von etwa 10^{14} W/cm² lässt sich Photoionisation ganz ohne das Konzept von Photonen beschreiben. In diesem Grenzfall wird ausgenutzt, dass Licht eine elektromagnetische Welle ist. Für solch hohe Intensitäten ist die Kraft, die aufgrund des elektrischen Anteils der elektromagnetischen Welle auf das Elektron wirkt, etwa so groß wie die Kraft aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung zwischen dem Elektron und dem einfach geladenen Ion.

Alternativ helfen Potentiale, um diese Situation zu beschreiben. Zu einem bestimmten Zeitpunkt erzeugt das Laserfeld mit Feldstärke E_{Laser} ein ortsabhängiges Potential $x E_{\text{Laser}}$ mit Ortskoordinate x . Das Coulomb-Potential des Ions lässt sich als $-1/x$ -Potential nähern, und die Energie des gebundenen Elektrons entspricht dem Ionisationspotential $-I_p$. Die Zustände des gebundenen und des freien Elektrons trennt nur noch ein endlicher Potentialwall (Abb. 1a). Mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit kann ein Elektron aus dem gebundenen Zustand durch die Potentialbarriere hindurchtunneln. Für atomaren Wasserstoff und Intensitäten von etwa 10^{14} W/cm² befindet sich der Tunnelausgang etwa 0,5 nm entfernt vom Kern des Ions. Tunneln ist ein rein quantenmechanischer Prozess, der nach den Regeln der klassischen Physik nicht stattfinden könnte [3]. Denn das Teilchen im Tunnel hat eine negative

Gesamtenergie und dürfte sich dort gemäß der klassischen Physik nie befinden.

Das Tunneln eines Elektrons erlaubt es beispielsweise, die Zeitabhängigkeit der Tunnelbarriere zu untersuchen, die für zirkular polarisiertes Licht vorliegt. Die Tunnelbarriere rotiert in der Polarisationssebene und macht eine volle Drehung pro Lichtschwingung. Für Licht im sichtbaren Spektralbereich dauert eine solche Drehung nur etwa zwei Femtosekunden. Tunneln durch zeitabhängige Barrieren ist besonders interessant. Denn auch wenn Tunneln instantan stattfindet, kann das Elektron auf seinem Weg durch die Potentialbarriere Energie und Drehimpuls aus dem treibenden Lichtfeld aufnehmen. Dann hat es am Tunnelausgang eine andere Energie als im Grundzustand.

Das nichtadiabatische Tunneln läuft zweistufig ab [4]: Im ersten Schritt wird eine bestimmte Anzahl an Photonen absorbiert und dadurch ein virtuelles Energieniveau im Atom besetzt. Von diesem aus erfolgt im zweiten Schritt das Tunneln. Dieser Prozess ist nun deutlich wahrscheinlicher als Tunneln aus dem Grundzustand, da die Tunnelwahrscheinlichkeit exponentiell mit der Dicke (und Höhe) der Barriere abnimmt. Die Wahrscheinlichkeit für den gesamten, nicht-adiabatischen Tunnelprozess ist das Produkt aus den Wahrscheinlichkeiten der beiden Teilprozesse. Der erste Prozess ist umso weniger wahrscheinlich, je mehr Photonen absorbiert werden müssen. Der zweite Prozess ist umso wahrscheinlicher je mehr Photonen im ersten Schritt absorbiert wurden, da sich die Tunnelbarriere entsprechend verkleinert (**Abb. 1b**) [5].

Zirkular polarisiertes Licht besitzt einen Drehimpuls von $1\hbar$ pro Photon. Dies wirft die Frage auf, ob das Elektron neben der Energie auch seinen Drehimpuls beim Tunneln ändert. Hierzu vergleichen wir das Tunneln eines Elektrons mit einer Magnetquantenzahl $m_i = +1$ bzw. -1 . Das Elektron tunnelt aus einem virtuellen Niveau mit $m_f = 0$ (bzw. 2) (**Abb. 1b**), wenn man von einem Elektron in einem gebundenen Zustand mit Magnetquantenzahl $m = -1$ (+1) ausgeht und zuvor ein zirkular polarisiertes Photon absorbiert wurde. Hier ist angenommen, dass sich für jedes aufgenommene Photon nicht nur die Energie, sondern auch der Drehimpuls des Elektrons ändern muss. Die beiden Fälle unterscheiden sich also in ihrem Drehimpuls am Tunnelausgang. Wenn der Impulsvektor am Tunnelausgang immer senkrecht zur Tunnelrichtung ist (was für zirkular polari-

siertes Licht eine berechnete Annahme ist), kann man den Erwartungswert des Impulses am Tunnelausgang Δp anhand der Magnetquantenzahl berechnen. Dazu nutzt man $L = r \times \Delta p$, was für die beschriebene Situation zu $\Delta p = m_f / |r|$ führt. Entscheidend ist, dass für $m_f = 0$ auch Δp Null wird und andernfalls Δp von Null verschieden ist. Die Tunnelwahrscheinlichkeit hängt von der potentiellen Energie des Elektrons unter der Barriere (rote Fläche in **Abb. 1**) ab, zudem ist der Impuls des Elektrons senkrecht zur Tunnelrichtung relevant [6]. Je größer der Impulsbetrag ist, desto unwahrscheinlicher ist der Tunnelprozess. Folglich ist zu erwarten, dass Elektronen mit $m_i = +1$ weniger wahrscheinlich tunnelt als Elektronen mit $m_i = -1$, da der Betrag von Δp für $m_i = +1$ größer ist als für $m_i = -1$. Positive m_i haben hier das gleiche Vorzeichen des Drehimpulses wie die zirkular polarisierten, einfallenden Photonen. Somit hängt für eine gegebene Lichthelizität die Tunnelwahrscheinlichkeit vom Vorzeichen der Magnetquantenzahl ab. Für zirkuläres Licht, dessen Feldvektor im Uhrzeigersinn dreht, tunnelt Elektronen mit negativer Magnetquantenzahl wahrscheinlicher als Elektronen mit positiver Magnetquantenzahl. Nicht-adiabatisches Tunneln ist also m -selektiv.

Selektives Tunneln

Diese m -Selektivität kann dazu dienen, mit Femtosekunden-Laserpuls Ringströme in einzelnen Atomen zu präparieren und zu detektieren. Im Anfangszustand liegen gleich viele Elektronen mit $m_i = -1$ und $+1$ vor. Unter Anwendung eines hochintensiven, zirkular polarisierten Laserpulses findet m -selektives Tunneln statt. Je nach Helizität des Laserpulses liegt anschließend ein einfach geladenes Ion vor, in dem das Elektron $m_i = -1$ oder $+1$ fehlt (**Abb. 2a–c**). Anschließend lässt sich mit einem zweiten Laserpuls gezielt der Tunnelprozess für das verbleibende Elektron untersuchen.

Ein solches Messschema erlaubt es, das Tunneln von Elektronen mit $m = -1$ mit dem Tunneln von Elektronen mit $m = +1$ direkt zu vergleichen (**Abb. 2**). Der Vergleich des Prozesses in **Abb. 2b** mit dem aus **Abb. 2f** ermöglicht dies nicht, da neben dem unterschiedlichen Vorzeichen von m auch die Drehrichtung des Lichts invertiert ist. Folglich sind etwa die Elektronenenergiespektren der getunnelten Elektronen in beiden Fällen identisch.

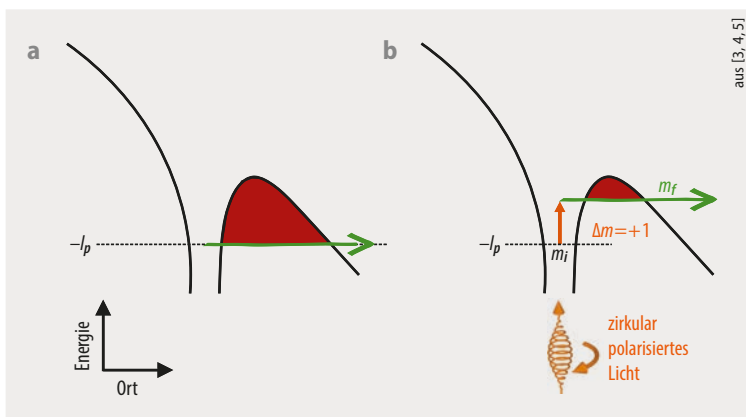
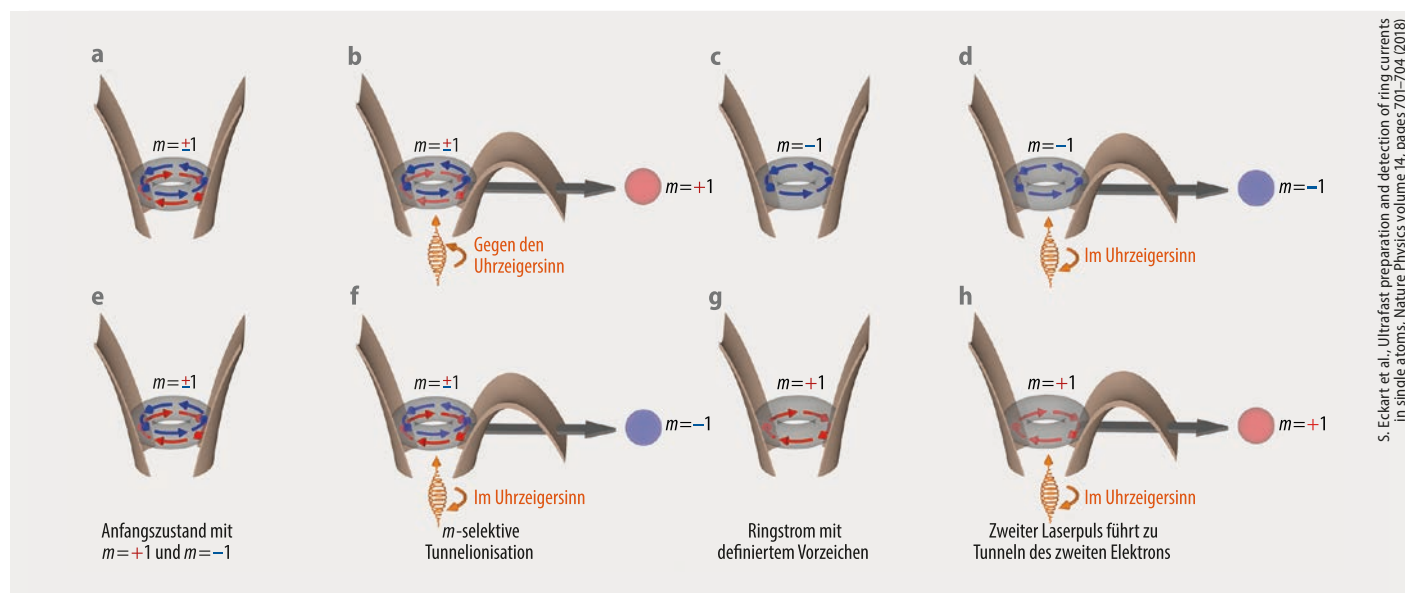


Abb. 1 Dem Coulomb-Potential (schwarze Linie, a) ist das elektrische Feld des Lasers überlagert. Ein gebundenes Elektron mit Energie $-I_p$ befindet sich innerhalb des Potentialtopfs. Mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit kann es durch die Potentialbarriere (rote Fläche) tunnelt (grüner Pfeil). Diese Darstellung ignoriert die zeitliche Entwicklung des Laserfeldes (adiabatisches Tunneln). Unter Berücksichtigung der zeitlichen Entwicklung (zirkular polarisiertes Licht, b) kann vor dem eigentlichen Tunnelprozess ein Photon absorbiert werden (nicht-adiabatisches Tunneln, oranger Pfeil). Dies erhöht die Energie des Elektrons. Da die Tunnelbarriere nun eine kleinere Fläche hat, ist die Tunnelwahrscheinlichkeit höher.



S. Eckart et al., Ultrafast preparation and detection of ring currents in single atoms, Nature Physics volume 14, pages 701–704 (2018)

Abb. 2 Die sequenzielle Doppelionisation wird durch zwei zeitlich getrennte Laserpulse getrieben (Pump-Puls in b, Probe-Puls in d). Die Bilder a–d illustrieren die Präparation und Detektion eines Ringstroms mit einem Elektron $m_i = -1$, in e–h ist die Helizität des Pump-Pulses (f) invertiert, der Probe-Puls hat den gleichen Drehsinn. In der Folge ist der Ringstrom des Ions in g invertiert. Dieses Schema zeigt die Erzeugung und den Nachweis von Ringströmen in einzelnen Atomen auf Sub-Zyklus-Zeitskalen [7]. Aus Symmetriegründen müssen die Elektronenenergiespektren zu b und f identisch sein; diejenigen zu d und h können sich unterscheiden, wenn der Tunnelprozess vom Vorzeichen der Magnetquantenzahl abhängt.

Die unterschiedlichen Elektronenenergiespektren aus **Abb. 2d** und **2h** zeigen aber direkt, dass das Tunneln m -selektiv erfolgt (**Abb. 3**). Erwartungsgemäß tunneln Elektronen mit $m = -1$ viel wahrscheinlicher als solche mit $m = +1$. Die Energieverteilungen der freigesetzten Elektronen unterscheiden sich ebenfalls leicht. Beide Unterschiede spiegeln die Differenzen in der kinetischen Energie im Tunnel und die unterschiedlichen Startimpulse am Tunnelausgang wider und gehen auf die oben beschriebene Drehimpulsdynamik während des Tunnelns zurück.

Der experimentelle Zugang

Die COLTRIMS-Reaktionsmikroskopie erlaubt es, Elektronenenergiespektren zu bestimmen (**Abb. 3**) [9]. Nach der Ionisation lenken statische elektrische und magnetische Felder die geladenen Fragmente (Elektronen und Ionen) auf orts- und zeitauflösende Detektoren. Diese messen die Auftrefforte und Flugzeiten aller geladenen Fragmente in Koinzidenz. Daraus leiten sich die Impulse aller Teilchen ab, aus denen Elektronenenergiespektren erzeugt werden.

Der grundlegende Ansatz, mit Laserfeldern auf einzelne Atome und Moleküle zu schießen, ist sehr vielseitig. Neben der Messung von Elektronenenergiespektren erlaubt es, zahlreiche Fragen zu beantworten. So lassen sich etwa dreidimensionale Elektronenimpulsverteilungen messen,

die in exotischen Laserfeldern entstehen (**Abb. 4**). Solche maßgeschneiderten Zwei-Farben-Laserfelder ermöglichen Einblicke in grundlegende Fragen des Teilchen- und des Wellencharakters des Elektrons in der Starkfeldionisation und helfen, das quantenmechanische Tunneln besser zu verstehen [7]. So können Elektronen in Zwei-Farben-Laserfeldern an ihrem Ion inelastisch streuen. Semiklassische Modelle, die dem Elektron Teilcheneigenschaften zuordnen, beschreiben dies [10]. Für bestimmte Zwei-Farben-Laserfelder treten Interferenzen des Elektrons mit sich selbst auf. Diese gehen darauf zurück, dass das Elektron zu verschiedenen Zeiten tunneln kann. Besonders spannend ist, dass der Zeitabstand der möglichen Startzeitpunkte auch kürzer als die Schwingungsperiode des Lichts sein kann (Sub-Zyklen-Interferenz) [11].

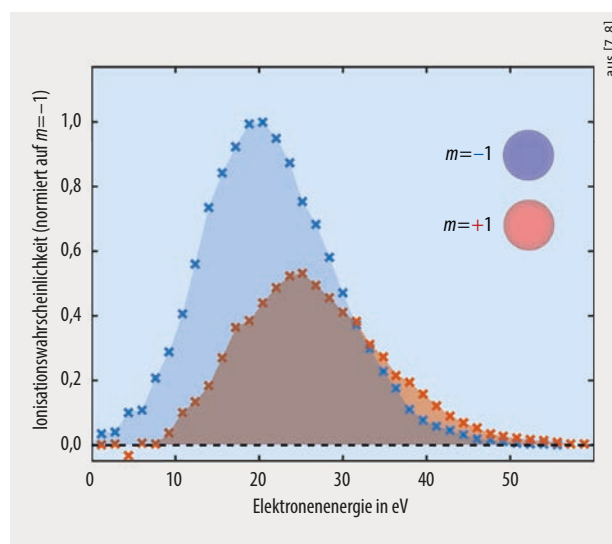


Abb. 3 Die Tunnelwahrscheinlichkeit für Elektronen mit $m = -1$ (blau) ist höher als für Elektronen mit $m = +1$ (rot). Also ist der Prozess aus **Abb. 2d** wahrscheinlicher als der in **Abb. 2h**. Der entscheidende Unterschied hierbei ist das Vorzeichen des Ringstroms relativ zur Helizität des Probe-Pulses [7, 8].

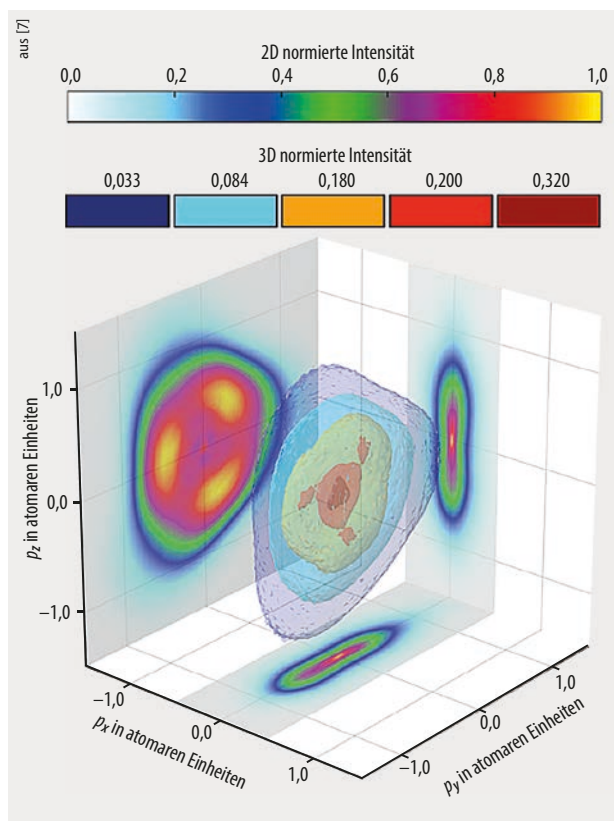


Abb. 4 Maßgeschneiderte Zwei-Farben-Laserfelder ionisieren Neon. Die 3D-Elektronenimpulsverteilung ist durch die Kombination von fünf halbtransparenten Isoflächen visualisiert. Die $p_y p_z$ -Ebene ist die Polarisationssebene. Die 2D-Histogramme zeigen Projektionen [7].

Charakterisierung der Phase der Wellenfunktion

Histogramme wie in **Abb. 3** und **4** entsprechen dem Betragsquadrat der elektronischen Wellenfunktion $|\Psi|^2$ des emittierten Elektrons. Eine weitere fundamentale Eigenschaft ist die Phase der elektronischen Wellenfunktion des Elektrons nach der Photoionisation. Deren Ableitung nach der Energie $\tau_w = \hbar \partial \arg(\Psi) / \partial E$ ist die Wigner-Zeit, welche ein Maß für die Dauer der Photoionisation ist. Diese Definition und eine neuartige interferometrische Detektionsmethode [12] erlauben es zu zeigen, dass sich die Wigner-Zeit für die Photoionisation von molekularem Wasserstoff um bis zu 80 Attosekunden ändert, je nachdem, in welche Richtung das Elektron relativ zur Molekülachse emittiert wird [1]. Die Ableitung der Phase des Elektrons nach der Energie ist eng verknüpft mit der räumlichen Struktur des elektronischen Wellenpakets am Tunnelausgang, da Phasengradienten im Impulsraum Verschiebungen im Ortsraum zuzuordnen sind. Die Messungen der Wigner-Zeit können also helfen, das tunnelnde Elektron im Ortsraum zu charakterisieren.

Hierbei spielt die absolute Phase des Elektrons keine Rolle. Anders verhält es sich bei zwei Elektronen in zwei verschiedenen Atomen. So bestimmt die relative Phase von atomaren Orbitalen, ob sich ein bindendes oder ein antibindendes Molekülorbital formt. Anders ausgedrückt haben Elektronen in gebundenen Molekülen eine wohldefinierte Phasenbeziehung zueinander und sind demnach verschränkt. Doch bleiben Elektronen auch in dissoziierenden

molekularen Zuständen weiterhin verschränkt. In diesem Fall vergrößert sich der Abstand der Atome mit der Zeit nach der Dissoziation immer weiter. So entstehen innerhalb einiger hundert Femtosekunden verschränkte Atome in einem Abstand von einigen Nanometern zueinander. Diese räumlich getrennten, verschränkten Atome lassen sich mit einem Probe-Laserpuls im Hinblick auf ihre Verschränkungseigenschaften mit Femtosekunden-Zeitauflösung untersuchen [13]. Die Konzepte der Starkfeldionisation, etwa m -selektives Tunneln, sind hier hilfreiche Werkzeuge.

Maßgeschneiderte, Femtosekunden-Laserpulse eröffnen in Kombination mit koinzidenter Impulsspektroskopie viele Möglichkeiten. So kann man mit dieser Anordnung magnetquantenzahlselektives Tunneln durch zeitabhängige Potentialbarrieren, Photoionisationsdauern und die Verschränkung von räumlich getrennten Atomen auf Femtosekunden-Zeitskalen untersuchen. Mit ähnlichen experimentellen Aufbauten sollten sich künftig viele weitere grundlegende quantenmechanische Phänomene mit hoher Orts- und Zeitauflösung untersuchen lassen.

*

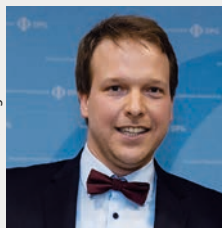
Auch in Zukunft werden solche Arbeiten nur in funktionierenden Teams gelingen. Die Ergebnisse, die in diesem Artikel vorgestellt wurden, wären ohne die Beiträge von vielen anderen nicht möglich gewesen. Einige davon sind Simon Brennecke, Reinhard Dörner, Kilian Fehre, Angelina Geyer, Alexander Hartung, Mikhail Ivanov, Till Jahnke, Maksim Kunitski, Manfred Lein, Jonas Rist, Lothar Schmidt, Horst Schmidt-Böcking, Markus Schöffler, Olga Smirnova, Daniel Trabert sowie die ganze Arbeitsgruppe von Reinhard Dörner aus Frankfurt am Main.

Literatur

- [1] D. Trabert et al., Nat. Comm. **12**, 1697 (2021)
- [2] M. Göppert-Mayer, Ann. Phys. **401**, 273 (1931)
- [3] L. V. Keldysh, Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1965)
- [4] M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan und C. H. Keitel, Phys. Rev. Lett. **114**, 083001 (2015)
- [5] S. Eckart et al., Phys. Rev. Lett. **121**, 163202 (2018)
- [6] M. Y. Ivanov, M. Spanner und O. Smirnova, J. Mod. Opt. **52**, 165 (2005)
- [7] S. G. Eckart, Dissertation, Goethe-Universität Frankfurt (2019)
- [8] S. Eckart et al., Nat. Phys. **14**, 701 (2018)
- [9] J. Ullrich et al., Rep. Prog. Phys. **66**, 1463 (2003)
- [10] S. Eckart et al., Phys. Rev. Lett. **117**, 133202 (2016)
- [11] S. Eckart et al., Phys. Rev. A **97**, 041402 (2018)
- [12] S. Eckart, Phys. Rev. Research **2**, 033248 (2020)
- [13] S. Eckart et al., arxiv:2108.10426

Der Autor

DPG / Jürgen Loesel 2023



Sebastian Eckart hat Physik in Konstanz studiert und an der Goethe-Universität Frankfurt promoviert. Seit Juni 2023 ist er Gruppenleiter im Rahmen eines ERC Starting Grants mit dem Ziel, erstmals dreidimensionale Laserfelder für Starkfeldionisationsprozesse zu verwenden. In seiner Freizeit fährt er gerne Fahrrad, außerdem plant er, in Padua, wo er für seine Bachelorarbeit geforscht hat, mal wieder eine Pizza zu essen.

Dr. Sebastian Eckart, Institut für Kernphysik, Goethe-Universität Frankfurt, Max-von-Laue-Str. 1, 60438 Frankfurt am Main