

# De nieuwe fysica van

Om de bewegingen van de elektronen in atomen en moleculen te kunnen waarnemen, zijn attosecondelasers nodig. De productie en karakterisatie van attosecondepulsen is pas sinds kort mogelijk. Toepassing van deze attosecondelasers belooft unieke inzichten te geven in de manier waarop elektronen wisselwerken met licht, en de wijze waarop een elektronische excitatie koppelt met andere vrijheidsgraden in een systeem. *Matthias Kling en Marc Vrakking*



Matthias Kling (1972) is gepromoveerd in de fysische chemie aan de Universiteit Göttingen (Duitsland) en deed postdoctoraal onderzoek in de femtochemie aan UC Berkeley in Californië. Op dit moment werkt hij in de groep van Marc Vrakking (AMOLF) in Amsterdam en bestudeert hij snelle processen in atomen en moleculen op attosecondetijdschalen (attofysica). Zijn werk wordt ondersteund door de Europese Unie met een Marie Curie-studiebeurs.



Marc Vrakking studeerde technische natuurkunde aan de Technische Universiteit Eindhoven en promoveerde in de scheikunde aan UC Berkeley. Sinds 1997 werkt hij op het FOM-Instituut voor Atoom en Molecuulfysica (AMOLF), waar hij een groep leidt die het maken en gebruiken van attosecondelaserpulsen onderzoekt. Sinds 2004 is hij tevens buitengewoon hoogleraar aan de Radboud Universiteit Nijmegen. Binnen Europa coördineert hij het Marie Curie-netwerk 'XTRA' (Ultra-short XUV Pulses for Time-Resolved and Non-Linear Applications).

Korte laserpulsen maken het mogelijk om snelle processen die zich in de natuur afspeelen in de tijd te volgen, op een manier die vergelijkbaar is met het maken van een film. Net zoals een film opgebouwd is uit beeldjes die enkele tientallen keer per seconde geregistreerd worden, doen fysici, chemici en biologen experimenten waarbij een laser momentopnamen maakt van een zich snel voltrekkend dynamisch proces. Een complicatie die zich hierbij voordoet is dat de opname en verwerking van één beeldje over het algemeen meer tijd in beslag neemt dan het totale proces dat men wil bestuderen. Daarom worden deze experimenten meestal gedaan in de vorm van een *pomp-probe*-experiment: het fysische, chemische of biologische systeem wordt keer op keer onder identieke omstandigheden geprepareerd (met een korte pomppuls), en vervolgens op een variabel tijdstip bekeken met behulp van een probepuls. De tijdsresolutie in het experiment en de tijdschaal van het dynamische proces dat bestudeerd kan worden wordt slechts beperkt door de tijdsduur van de pompprobepuls.

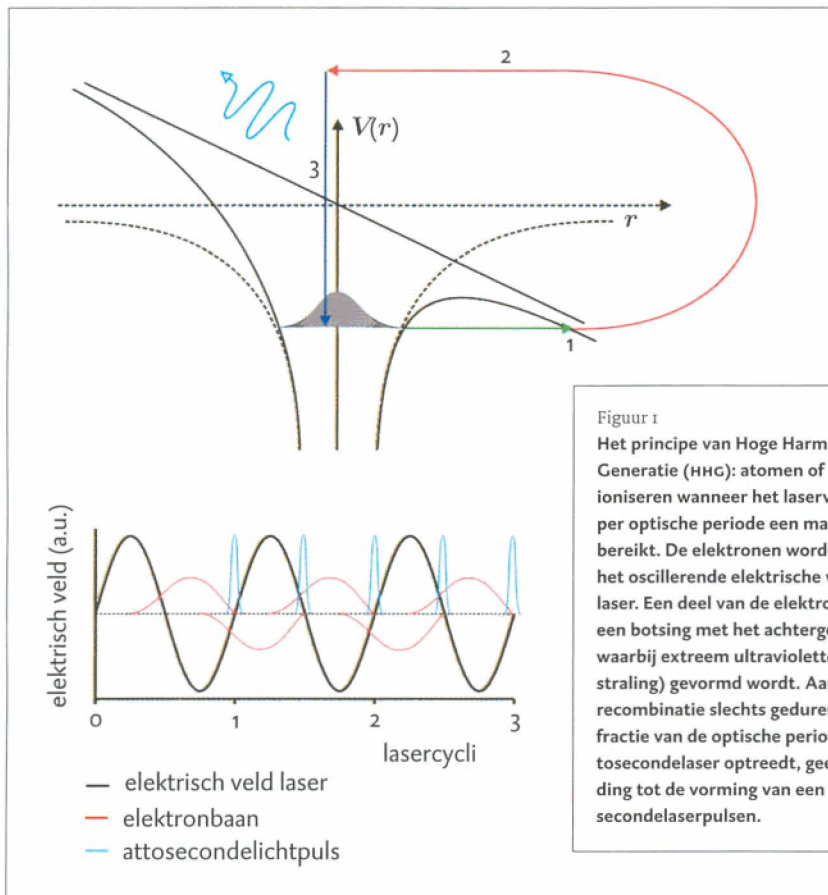
## STEEDS SNELLER

Het bereiken van steeds kortere pulsduren is een rode draad geweest in de ontwikkeling van geavanceerde lasersystemen in de afgelopen tientallen jaren. Bewegingen van atomen die

aanleiding geven tot reacties van moleculen spelen zich voornamelijk op femtosecondetijdschalen af en zijn de afgelopen tientallen jaren uitgebreid bestudeerd, dankzij de ontwikkeling van de titaan-saffier-laser (Ti-Sa-laser) en de ontwikkeling van de zogenoemde *chirped pulse amplification*-versterkers (CPA-versterkers). Met dit soort systemen, opererend vanaf het infrarode tot het ultraviolette deel van het spectrum, is het mogelijk om atomaire bewegingen waar te nemen met een tijdsresolutie van tenminste 5 tot 10 femtoseconden. De snelle bewegingen van elektronen vereiste een nieuwe technologie: de attosecondelaser.

De eerste attosecondelaser (1 attoseconde =  $10^{-18}$  seconden) werd in 2001 gerapporteerd door Pierre Agostini (CEA Saclay, Frankrijk) en Harm Geert Muller (AMOLF). Zij lieten zien dat in hoge harmonische generatie (HHG) pulsen gevormd worden met een duur van slechts enkele honderden attoseconden. Hoge harmonische generatie (zie figuur 1) is een proces waarbij een gasvormig atomaire of moleculair medium blootgesteld wordt aan een intense femtosecondelaser (meestal een Ti-Sa-laser, met een centrale golflengte rond 800 nm). De femtosecondelaser trekt elektronen uit de atomen/moleculen in korte pulsen die twee keer per optische periode gevormd worden als het elektrisch veld van de laser maximaal is. Deze elektronen worden versneld in het oscillerende elektrische veld van de laser. Een deel van de elektronen wordt hierbij teruggedreven naar het atomaire of moleculaire ion waaruit ze afkomstig zijn. In de hierop volgende elektron-ion-interactie is er een kleine maar eindige kans dat een recombinatie plaatsvindt, waarbij de energie die in het systeem geïnvesteerd is (de ionisatie-energie van het elektron plus de kinetische energie van het elektron als gevolg van de versnelling in het laserveld) vrij-

# attosecondelasers



Figuur 1

Het principe van Hoge Harmonische Generatie (HHG): atomen of moleculen ioniseren wanneer het laserveld twee keer per optische periode een maximum bereikt. De elektronen worden versneld in het oscillerende elektrische veld van de laser. Een deel van de elektronen ondergaat een botsing met het achtergebleven ion, waarbij extreem ultraviolette straling (xuv-straling) gevormd wordt. Aangezien deze recombinatie slechts gedurende een kleine fractie van de optische periode van de femtosecondelaser optreedt, geeft dit aanleiding tot de vorming van een trein van attosecondelaserpulsen.

komt als een foton in het extreem ultraviolette (xuv)-deel van het spectrum. Vanwege de gepulste aard van de ionisatie van de elektronen wordt dit licht eveneens in korte pulsjes gevormd, waarbij zelfs attosecondepulsen ontstaan. De duur van deze pulsjes is maar een fractie van de optische periode van de Ti-Sa-laser ( $\tau \ll 2,7$  femtoseconden). Het experiment van Agostini en Muller toonde aan hoe, uitgaande van een Ti-Sa-laser met een pulsduur van ongeveer 40 femtoseconden (circa vijftien optische perioden), een trein van enkele tientallen  $\sim 250$ -attosecondelaserpulsen gevormd werd, met een onderlinge afstand van 1,35 femtoseconden, zijnde een halve periode van de Ti-Sa-laser. Soortgelijke metingen werden kort daarop ook in Amsterdam bij AMOLF verricht.

## ATTOSECONDEPULS(TREIN)

Hoewel pulsjes van enkele honderden attoseconden kort genoeg zijn voor veel interessante experimenten waarin elektronodynamica bestudeerd wordt, is het in veel gevallen niet mogelijk om deze experimenten te doen met een attosecondepulstrein. Indien de pomp- en/of probepuls bestaat uit een trein van pulsjes, dan is er een onzekerheid over de attosecondepuls waarmee de elektronenbeweging in gang gezet wordt en de attosecondepuls waarmee de opname van deze beweging gemaakt wordt. Derhalve is er veel werk verricht om individuele attosecondepulsjes op te wekken. Hiervoor zijn inmiddels twee succesvolle methoden ontwikkeld. De eerste is gebaseerd op het gebruik van een femtosecondepuls die zo kort is ( $\sim 5$  femtoseconden) dat

het driestapsproces van ionisatie, versnelling en recombinatie slechts één keer tijdens de puls plaatsvindt. De andere methode maakt gebruik van een femtosecondelaser waarvan de polarisatie tijdens de puls verandert (van circulair, naar lineair, naar circulair), en is gebaseerd op het gegeven dat recombinatie alleen mogelijk is als gedurende een halve periode de polarisatie lineair is.

Bij het gebruik van zeer korte femtosecondepulsjes om een geïsoleerde attosecondepuls te maken, is het belangrijk om te weten wanneer het elektrisch veld van de laser maximaal/minimaal is binnen de omhullende van de puls. De eigenschap van de laser die dit bepaalt is de zogenaamde carrier-envelope phase (CEP). Geïsoleerde attosecondelaserpulsjes kunnen alleen reproduceerbaar gemaakt worden als de CEP van de laser van puls tot puls identiek is. Daarom is er de afgelopen jaren veel aandacht geweest voor de ontwikkeling van CEP-gestabiliseerde lasersystemen (in Nederland in de groep van Kjelt Eikema aan de VU). De eerste intense, CEP-gestabiliseerde femtosecondelaser werd in 2003 ontwikkeld door Ferenc Krausz van de TU Wien (inmiddels werkzaam aan het Max-Planck Instituut für Quantenoptik – MPQ – in Garching, Duitsland), en maakte gebruik van de frequentiekammen-techniek waarvoor Theodor Hänsch (eveneens MPQ) samen met Jan Hall in 2005 de Nobelprijs Natuurkunde kreeg.

## ELEKTRONEN STUREN

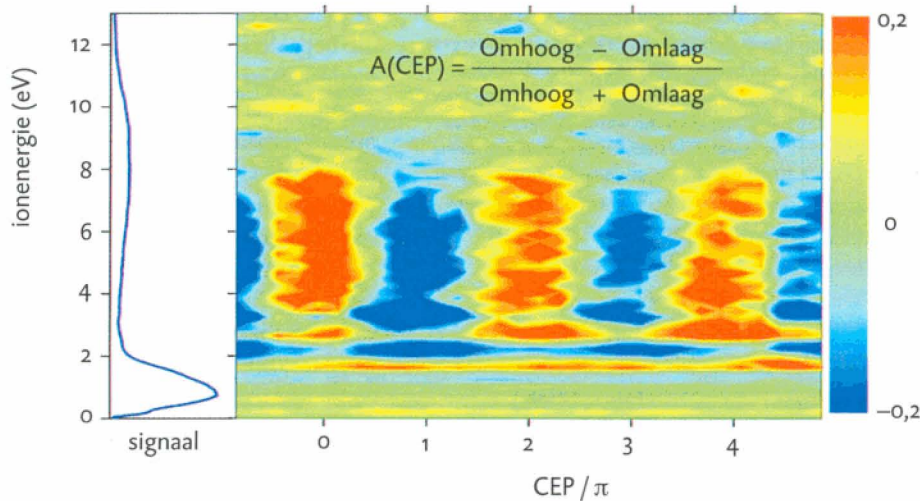
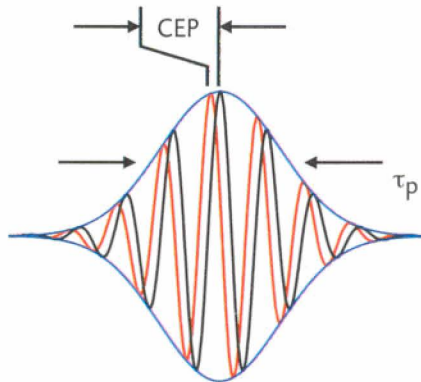
Sinds 2003 zijn intense, CEP-gestabiliseerde laserpulsjes gebruikt om geïsoleerde attosecondelaserpulsjes te maken en om de foto-ionisatie van atomen (specifiek: de richting waarin het elektron uit het atoom vliegt) te sturen. In samenwerking met de groep van Ferenc Krausz, wereldleider op het gebied van attosecondepulsjes, hebben

wij recentelijk onderzocht in hoeverre het mogelijk is om met een CEP-gestabiliseerde laser het transport van elektronen binnen een molecuul te sturen [1]. Daarvoor hebben we een ex-

serpuls. Om zichtbaar te maken of het elektron zich bij het ene, dan wel het andere proton bevond, gebruikten we vervolgens de laser om het molecuul te dissociëren. Met behulp van de in 1996 door Dave Parker (Nijmegen) ontwikkelde tweedimensionale velocity map imaging-techniek werd de snelheid van het bij de dissociatie gevormde D<sup>+</sup>-ion

deling, met een maximale kinetische energie van ongeveer 12 eV. In de contourplot in figuur 2 wordt een asymmetrie-parameter getoond (gedefinieerd als het genormaliseerde verschil tussen het aantal D<sup>+</sup>-ionen dat naar boven of naar beneden langs de polarisatie-as van de laser uitvliegt) als functie van de kinetische energie van de D<sup>+</sup>-ionen en de CEP van de laser. Duidelijk zichtbaar is dat voor fragmenten met kinetische energieën tussen 3 en 8 eV de asymmetrie-parameter afhangt van de CEP van de laser, met andere woorden de CEP van de laser bepaalt of het elektron in de dissociatie meebeweegt met de kern die naar boven respectievelijk beneden uitvliegt.

**Figuur 2**  
Sturing van de lokalisatie van het elektron in D<sub>2</sub><sup>+</sup>. Bij ultrakorte laserpulsen is niet alleen de lengte, de intensiteit en de golflengte van belang, maar ook de carrier envelope phase (CEP) die aangeeft waar de minima en maxima van het elektrische veld van de laser zich bevinden ten opzichte van het maximum in de omhullende van de laser. In de dissociatieve ionisatie van D<sub>2</sub>-moleculen (D<sub>2</sub> → D<sup>+</sup> + D) kan met behulp van de CEP van de laser gestuurd worden of het D<sup>+</sup>-ion naar boven of naar beneden langs de polarisatie-as wegvliegt.



## INTERFERENTIE IN H<sub>2</sub>

Verdere experimenten hebben laten zien dat deze gecontroleerde elektronlokalisatie veroorzaakt wordt door een mechanisme dat twee belangrijke elementen bevat. Allereerst wordt de asymmetrische dissociatie in gang gezet door een botsing van het D<sub>2</sub><sup>+</sup>-ion met het elektron dat uitgeworpen wordt op het moment dat het neutrale D<sub>2</sub>-molecuul in D<sub>2</sub><sup>+</sup> omgezet wordt. Deze elektron-ion-botsing lijkt sterk op de elektron-ion-botsing die in het eerder beschreven proces van hoge harmonische generatie plaatsvindt. Dit blijkt uit de afhankelijkheid van de elektronlokalisatie ten aanzien van de laserpolarisatie (lineair of circulair). Verder laten numerieke berekeningen zien dat het dissociërende D<sub>2</sub><sup>+</sup>-molecuul fotonen blijft uitwisselen met de laser, waardoor het zich aan het eind van het experiment niet langer in één welgedefinieerde elektronische toestand bevindt, maar in een zogenaamde 'coherente superpositie' van ten minste twee elektronische toestanden. Dit is belangrijk, omdat individuele elektronische toestanden een welgedefinieerde pariteit hebben, wat impliceert dat bij een dissociatie evenveel D<sup>+</sup>-ionen omhoog als omlaag zouden vliegen. Slechts wanneer de golffunctie van het molecuul tegelijkertijd bijdragen van *verscheidene* elektronische niveaus bevat, is het mogelijk om de pariteit – en dus de symmetrie – van de elektronische golffunctie te breken.

periment gedaan aan het simpelste molecuul waarvoor deze vraag relevant is, het H<sub>2</sub><sup>+</sup>-molecuul (eigenlijk, om experimentele redenen, het D<sub>2</sub><sup>+</sup>-molecuul), bestaande uit twee protonen en één elektron. We hebben voor dit molecuul onderzocht in hoeverre we konden sturen of het elektron zich bij het ene, dan wel het andere proton bevindt.

Om dit experiment uit te kunnen voeren, moesten we het D<sub>2</sub><sup>+</sup>-molecuul allereerst produceren, iets wat eenvoudig te doen is via ionisatie van neutraal D<sub>2</sub> met een intense femtosecondela-

gemeten. Op basis van impuls- en energiebehoud werd hiermee tegelijkertijd de snelheid van het neutrale D-atoom, en dus de positie van het elektron bepaald.

Het belangrijkste resultaat van het experiment wordt getoond in figuur 2. Aan de linkerkant van deze figuur wordt de kinetische-energieverdeling van de in de dissociatie gevormde D<sup>+</sup>-ionen getoond. Op grond van het feit dat de dissociatie plaatsvindt volgens een aantal (uitgebreid bestudeerde en goed begrepen) mechanismen, is dit een zeer brede kinetische-energiever-

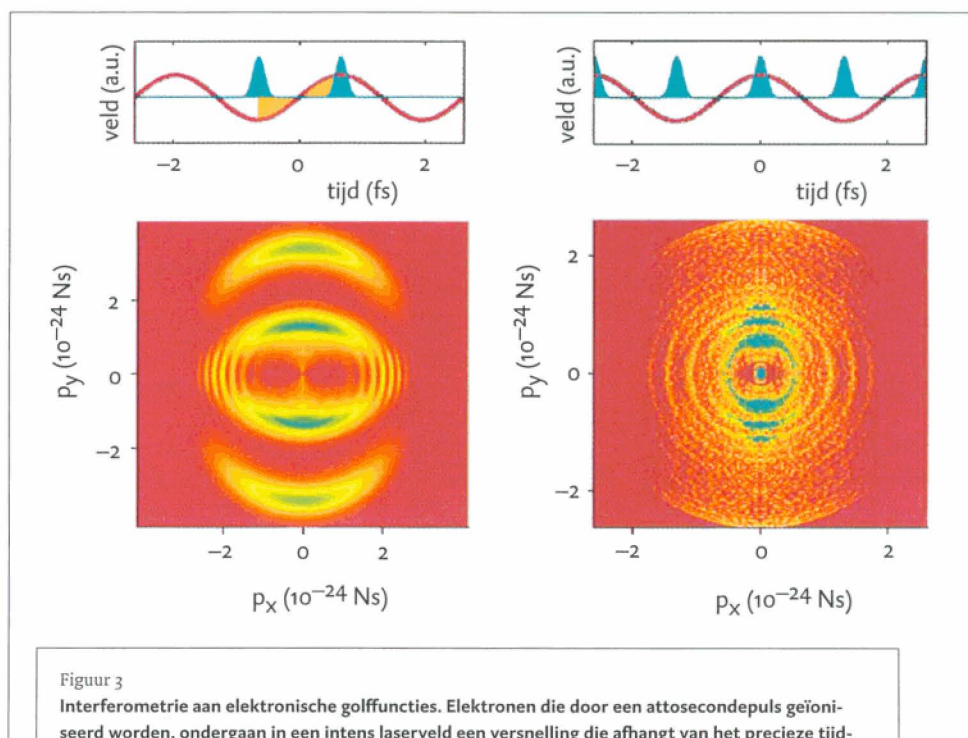
We kunnen de lokalisatie van het elektron in de dissociatie van  $D_2^+$  ook op een andere manier beschrijven. Onder invloed van de laser wordt het  $D_2^+$ -elektron heen en weer gedreven tussen de twee atoomkernen. Doordat deze kernen zich echter van elkaar verwijderen, ontstaat er een barrière, waar het elektron niet langer overheen kan bewegen of doorheen kan tunnelen. Afhankelijk van de CEP van de laser blijft het elektron dan verder bij het ene of het andere proton. Huidige experimenten in Garching zijn erop gericht om de oscillatie van het elektron tussen de twee protonen (die zich afspeelt op een attosecondetijdschaal!) en de uiteindelijke lokalisatie van het elektron op een van de twee, zichtbaar te maken.

#### VAN WATERSTOF NAAR DE VASTE STOF

Interferentie van golf functies is een essentieel element van quantummechanica (of, in de woorden van Richard Feynman "het enige mysterie van de quantummechanica") en dus is het wellicht niet verwonderlijk dat het een belangrijke rol speelt in veel attoseconde-experimenten. Een mooie illustratie hiervan is een experiment dat wij onlangs samen met Anne L'Huillier (Lund, Zweden, uitvinder van de hoge harmonische techniek) hebben uitgevoerd (zie figuur 3) [2]. In dit experiment werden argonatomen geïoniseerd door een attosecondepulstrein, in aanwezigheid van een sterk infrarood laserveld. Zodra het atoom geïoniseerd is door een van de attosecondepulsen, staat het elektron bloot aan het oscillerende elektrische veld van de infrarood laser. Als gevolg hiervan verandert de snelheid van het elektron, afhankelijk van het moment waarop de ionisatie plaatsvindt. Sommige elektronen ondervinden een snelheidsverandering langs de polarisatie-as in de positieve richting, terwijl andere elektronen (die een halve periode eerder of later ioniseren) een snelheidsverandering in de tegengestelde richting ondergaan. Dit heeft als interessante consequentie dat aan het eind van het experiment, als wederom via *velocity map imaging* de snelheid  $v$  van de elektronen bepaald wordt, een

interferentie optreedt tussen elektronen die direct na de ionisatie (voordat de versnellingsverandering  $\pm\delta v$  onder invloed van het infrarode laserveld optrad) een snelheid  $v + \delta v$  respectievelijk  $v - \delta v$  hadden. Met andere woorden, het gemeten interferogram kan gezien worden als een meting van het faseverschil tussen elektronen die direct na ionisatie door een van de attosecondepulsen uitvliegen met een snelheid  $v + \delta v$  en elektronen die na ionisatie door een andere attosecondepuls uitvliegen met een snelheid  $v - \delta v$ , en kan gebruikt worden om de fase van de

om de eerste stappen te zetten in de richting van interferometrie van elektronische golfpakketten. Als de huidige trends zich voortzetten, zullen attosecondepulsen de komende jaren gebruikt worden om elektronische processen in moleculen en in de gecondenseerde fase vast te leggen, waarbij hopelijk diepe inzichten verworven kunnen worden in de manier waarop elektronen wisselwerken met licht, wat de rol is van elektron-elektron-interacties en hoe een elektronische excitatie koppelt met andere vrijheidsgraden in een systeem.



Figuur 3  
Interferometrie aan elektronische golf functies. Elektronen die door een attosecondepuls geïoniseerd worden, ondergaan in een intens laserveld een versnelling die afhangt van het precieze tijdstip van de ionisatie. Indien atomen of moleculen door twee opeenvolgende attosecondelaserpulsen geïoniseerd worden (berekening links) geeft dit aanleiding tot interferentiepatronen die informatie bevatten over de fase van de elektronische golf functie. Deze interferentiepatronen zijn recentelijk waargenomen (rechts) in een experiment waarbij gebruikgemaakt werd van een trein van enkele tientallen attosecondelaserpulsen.

elektronische golf functie in de impulsrepresentatie te bepalen.

Onderzoek aan de generatie, de karakterisering en het gebruik van attosecondelaserpulsen is de afgelopen vijf jaar explosief toegenomen. Talrijke methoden voor de karakterisering van attosecondepulsen zijn al ontwikkeld. Attosecondepulsen zijn gebruikt om Auger-decay tijdsopgelost te bestuderen, om het elektrisch veld van een ultrakorte laserpuls vast te leggen, en

#### REFERENTIES

- 1 M.F. Kling, Ch. Siedschlag, A.J. Verhoef, J.I. Khan, M. Schultze, Th. Uphues, Y. Ni, M. Uiberacker, M. Drescher, F. Krausz en M.J.J. Vrakking, 'Control of electron localization in molecular dissociation', *Science* **312** (2006), 246.
- 2 T. Remetter, P. Johnsson, J. Mauritsson, K. Varjú, Y. Ni, F. Lépine, E. Gustafsson, M. Kling, J. Khan, R. López-Martens, K.J. Schafer, M.J.J. Vrakking en A. L'Huillier, 'Attosecond electron wave packet interferometry', *Nature Physics* **2** (2006), 323.