

Wenn Licht Atome in Stücke reißt

Elektronenkorrelationen in starken Feldern

Reinhard Dörner, Harald Giessen, Robert Moshhammer und Horst Rottke

Mit gepulsten Lasern lassen sich heute für wenige Femtosekunden Lichtintensitäten von mehr als 10^{18} W/cm² erzeugen. Dabei werden elektrische Feldstärken von 10^{10} V/cm erreicht, vergleichbar mit den Feldern, die Elektronen in Atomen binden. Wie verhalten sich Atome unter solch extremen Bedingungen? Während auf der einen Seite Wechselwirkungen von extremen Laserfeldern mit Materie schon heute viele Anwendungen haben, etwa in der Medizin oder der Materialbearbeitung, sind auf der anderen Seite immer noch viele der fundamentalen Fragen dieser Wechselwirkung ungeklärt. Insbesondere stellt sich eines der ältesten Probleme der Quantenmechanik, das Mehrteilchenproblem, von Neuem: wie verhalten sich Mehrelektronensysteme in starken Feldern? Aufschluss darüber erlauben neue Experimente, die erstmals die Impulse von Ionen und Elektronen aus der Mehrfachionisation von Atomen in Laserfeldern sichtbar machen.

Maria Göppert-Mayer sagte 1931 voraus, dass Einsteins photoelektrischer Effekt auch möglich sein sollte, wenn die Energie eines einzelnen Photons zu gering ist, um die Bindungsenergie des Elektrons zu überwinden [1]. Ein Elektron kann mehrere Photonen absorbieren und schließlich aus dem Festkörper oder einem Atom emittiert werden. Es dauerte aber bis in die 60er Jahre und bedurfte der Erfindung des Lasers, um hinreichend intensive Photonenfelder verfügbar zu haben, damit man den Prozess der Multiphotonenionisation an freien Atomen experimentell beobachten konnte [2]. Sehr bald ergab sich eine weiterführende Frage: was passiert, wenn das zu ionisierende System mehrere Elektronen hat? Kann man ein Photonenfeld an mehrere korrelierte Elektronen koppeln? Über welchen Mechanismus geschieht das? Entnehmen die Elektronen die Energie vorzugsweise unabhängig voneinander aus dem Feld, oder nimmt ein Elektron die Energie auf und teilt sie anschließend mit einem zweiten?

Eine Blaskammer für μeV -Teilchen

Zur Beantwortung dieser Frage gelang kürzlich ein entscheidender experimenteller Durchbruch. Die Schlüsseltechnik dieser neuen Experimente ist die *Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy* (COL-

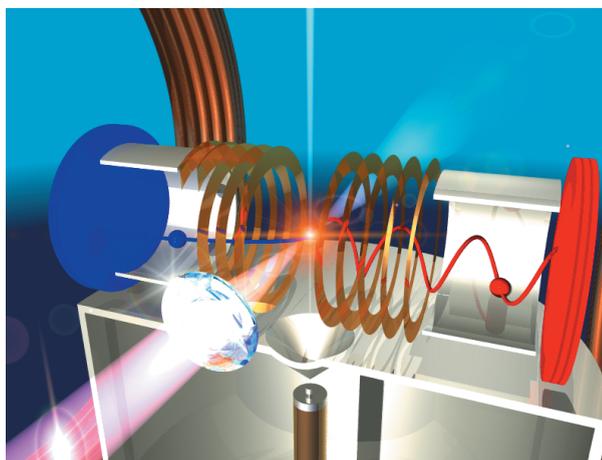


Abb. 1:

Die COLTRIMS-Technik liefert Abbilder mehrerer Teilchen im Impulsraum mit einer Auflösung von wenigen μeV . Ein gepulster Laserstrahl (30 fs, 800 nm) wird in einen dünnen Überschallgasstrahl fokussiert. Im Fokus ($10 \mu\text{m}$ Durchmesser) wird eine Lichtintensität von mehr als 10^{15} W/cm² erreicht. Das entstehende Ion (blau) und eines oder mehrere Elektronen (rot) werden von einem elektrischen und magnetischen Feld auf zwei einander gegenüber liegende zeit- und ortsauflösende Detektoren (rot und blau) geleitet. Aus dem Auftreffort und der Flugzeit lässt sich für jedes der Teilchen der Impulsvektor und sein Ladungszustand bestimmen.

TRIMS) [3], eine über die letzten zwölf Jahre entwickelte bildgebende Technik für Fragmente von Atomen und Molekülen. Ähnlich wie die Blaskammer die Impulse von MeV-Teilchen sichtbar macht, liefert COLTRIMS Abbilder mehrerer Teilchen im Impulsraum mit einer Auflösung von wenigen μeV [3, 4]. Die Atome werden zunächst in einer Überschallexpansion gekühlt und der Laser in den Atomstrahl auf etwa $10 \mu\text{m}$ fokussiert. Die Elektronen und das Ion werden mit einem schwachen elektrischen und einem überlagerten homogenen magnetischen Feld auf zwei einander gegenüberliegende zeit- und ortsauflösende Detektoren geleitet (siehe Abb. 1). Für jedes Teilchen registriert man die Flugzeit und den Auftreffort und bestimmt daraus seinen Impulsvektor.

Ein Elektron tunnelt aus dem Atom

Abbildung 2 (rechts) zeigt die Impulsverteilung von einfach geladenen Neon-Ionen, die im Fokus eines Laserstrahls ($\lambda = 800$ nm) bei einer Lichtintensität von $1,2 \times 10^{15}$ W/cm² erzeugt werden. Trotz der enormen

Priv.-Doz. Dr. Reinhard Dörner, Fakultät für Physik, Hermann-Herder-Str. 3, 79104 Freiburg;
Prof. Dr. Harald Giessen, Institut für Angewandte Physik, Universität Bonn, Wegelerstr. 8, 53115 Bonn;
Priv.-Doz. Dr. Robert Moshhammer, MPI für Kernphysik, Saupfercheckweg 1, 69117 Heidelberg;
Dr. Horst Rottke, Max-Born-Institut, Max-Born-Str. 2a, 12489 Berlin

Energiedichte beträgt die Wahrscheinlichkeit, ein Neon-Atom zu ionisieren, nur wenige Prozent. Es zeigt sich, dass die Ionen überwiegend entlang der Polarisationsrichtung der Lichtwelle emittiert werden und ihre Impulsverteilung ein Maximum bei Impuls Null hat. Bei einfacher Ionisation sind die Ionen das Spiegelbild der Elektronen. Der Impulsübertrag durch die Absorption von Photonen ist so klein, dass zur Erhaltung des Impulses Elektron und Ion in entgegengesetzte Richtung mit gleichem Impuls emittiert werden.

Die Energieverteilungen von Elektronen aus der Einfachionisation werden schon seit vielen Jahren im Detail untersucht [2]. Als ein einfaches und illustratives Zweistufenmodell zum Verständnis des Ionisations-

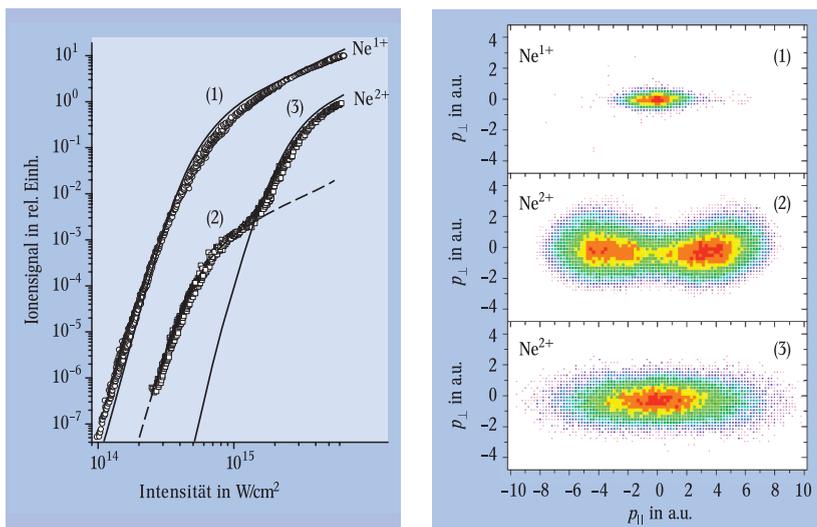


Abb. 2:
 ► Links: Ionisationsausbeuten einfach und zweifach geladener Neon-Ionen im Fokus eines gepulsten Laserstrahls (800 nm, 200 fs) als Funktion der Lichtintensität (aus [7]). Die durchgezogene Linie zeigt die erwartete Ne²⁺-Ausbeute aufgrund sequentieller Emission der Elektronen.
 ► Rechts: Impulsverteilung der einfach geladenen Neon-Ionen bei der mit (1) markierten Intensität sowie Impulsverteilung doppelt geladener Neon-Ionen bei den mit (2) (nichtsequentieller Bereich) und (3) (sequentieller Bereich) markierten Intensitäten (aus [2]). Die Polarisationsrichtung des Lichtes liegt entlang der horizontalen Achse. Rote Farbe und große Quadrate kennzeichnen eine große Anzahl registrierter Ereignisse, Übergang zu blau/violett und kleinen Quadraten für eine kleine Anzahl.

prozesses hat sich Feldionisation (Tunnelionisation) im elektrischen Feld der Lichtwelle bewährt (siehe Abb. 3). Im ersten Schritt tunnelt das Elektron durch eine Barriere des Potentials, das aus der Überlagerung des Kernfeldes und des elektrischen Feldes der Lichtwelle entsteht. Die so durch Tunnelionisation „geborenen“ freien Elektronen und Ionen werden sofort von dem oszillierenden elektrischen Feld im Laserstrahl hin und her beschleunigt. Der Nettoimpuls, der nach dem Abklingen des Laserpulses von dieser Zitterbewegung übrig bleibt, also am Ende beobachtet wird, hängt klassisch ausschließlich von der Phase des Feldes zum Zeitpunkt des Tunnelns ab. Für ein Teilchen, das im Maximum der elektrischen Feldstärke tunnelt, heben sich am Ende des Laserpulses die Impulsüberträge aus dem Wechselfeld exakt auf, es nimmt keinen Nettoimpuls auf. Da die Tunnelwahrscheinlichkeit dann am höchsten ist, wenn auch das elektrische Feld am größten ist, liegt das Maximum der Impulsverteilung der Ne¹⁺-Ionen bei Null.

Zwei Elektronen...

Auf welche Weise werden aber nun zwei oder mehr Elektronen emittiert? Im einfachsten Fall nehmen beide Elektronen unabhängig voneinander Energie aus dem Laserfeld auf und werden emittiert, ohne dass hierfür die Elektron-Elektron-Wechselwirkung eine Rolle spielt. In diesem Fall können z. B. zwei Elektronen nacheinander zu völlig zufälligen und voneinander unabhängigen Zeitpunkten während des Laserpulses ionisiert werden (sequentieller Prozess). Die Impulsverteilung der doppelt geladenen Ionen hätte dann ebenfalls ein Maximum bei Impuls Null [5].

Die gemessene Impulsverteilung von Ne²⁺-Ionen ist in Abb. 2 (rechts) dargestellt. Sie ist um ein Vielfaches breiter als die Impulsverteilung der einfach geladenen Ionen und hat überraschenderweise kein Maximum bei Impuls Null. Eine sequentielle Bildung von Ne²⁺ aus Ne kann damit bei dieser Lichtintensität klar ausgeschlossen werden. Das bestätigt die Schlussfolgerungen, die bereits aus den Messungen der Erzeugungsraten einfach und doppelt geladener Ionen als Funktion der Laserleistung gezogen wurden [6, 7] (siehe Abb. 2, links). Die Annahme eines sequentiellen Prozesses (Linie in Abb. 2, links) unterschätzt die tatsächlich beobachtete Doppelionisationsrate bei nicht zu hohen Lichtintensitäten um viele Größenordnungen. Erst bei höchsten Intensitäten, wenn die einfache Ionisation des Atoms gesättigt ist, wird der sequentielle Prozess so wahrscheinlich, dass sich die beobachteten Raten damit beschreiben lassen. Die Impulsverteilung doppelt geladener Ionen lässt sich dann tatsächlich aus der Autokorrelation der Einfachionisation berechnen [5] (Abb. 2, rechts).

... tun sich zusammen

Es muss also einen im Vergleich zum sequentiellen Prozess um ein Vielfaches effektiveren Doppelionisationsmechanismus geben. Es wurde bald spekuliert, dass nur ein Elektron die Kopplung an das Laserfeld übernimmt, und das zweite Elektron über elektronische Korrelation emittiert wird. So könnten beide Elektronen praktisch gleichzeitig während derselben Schwingung des optischen Feldes freigesetzt werden (nichtsequentielle Ionisation). Etwas ähnliches findet bei der Doppelionisation mit einem einzelnen, aber hochenergetischen Photon statt. In diesem Fall wird ein Elek-

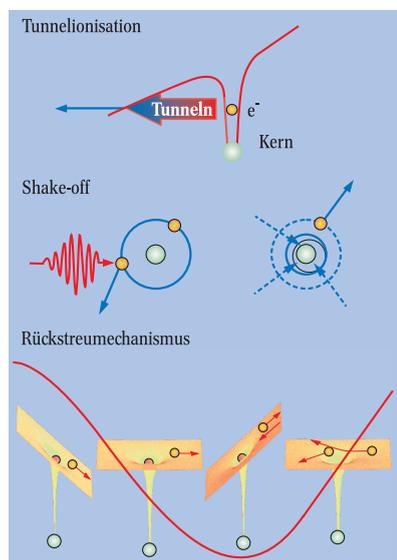


Abb. 3:
 Mechanismen der Einfach- und Doppelionisation in einem Laserfeld.
 ► Tunnelionisation (oben): Dem Coulomb-Potential des Kernes überlagert sich ein zeitabhängiges, mit dem elektrischen Feld der Lichtwelle verknüpftes Potential. Ein gebundenes Elektron kann durch die sich ausbildende Potentialbarriere tunneln und so vom elektrischen Feld der Lichtwelle ionisiert werden.
 ► Shake-off (Mitte): Entfernt man sehr schnell eines der Elektronen aus einem Mehrelektronenatom, kann ein anderes Elektron durch die plötzliche Änderung des Potentials abgeschüttelt werden.
 ► Rückstreumechanismus (unten): Ein Elektron wird durch Tunnelionisation freigesetzt und vom elektrischen Feld der Lichtwelle beschleunigt. Wenig später kippt die Richtung des elektrischen Feldes um und treibt das Elektron zurück an seinen Ursprungsort. Hier kann es ein noch gebundenes Elektron aus dem Potentialtopf herausschlagen.

tron so schnell aus dem Atom entfernt, dass die zurückbleibende Elektronenhülle sich dieser Veränderung nicht adiabatisch anpassen kann. Sie relaxiert dann in Eigenzustände des neuen, jetzt weniger abgeschirmten Potentials, von denen einige im Ionisationskontinuum liegen. Das zweite Elektron wird, wenn auch mit geringer Wahrscheinlichkeit, quasi abgeschüttelt (shake-off, siehe Abb. 3).

Die beobachtete Doppelstruktur in den Ionenimpulsen von He^{2+} [5] und Ne^{2+} [8] spricht klar gegen ein Abschütteln (shake-off) des zweiten Elektrons. Dieser Mechanismus führt zu einer praktisch gleichzeitigen Emission beider Elektronen, mit der größten Wahrscheinlichkeit in einem Maximum des oszillierenden elektrischen Feldes. Dies aber sollte, genau wie die sequentielle Ionisation, zu einem Maximum in der Impulsverteilung am Ursprung führen.

Alternativ zum Shake-off haben Corkum und andere [9, 10] einen einfachen, im Rahmen der klassischen Mechanik verständlichen Mechanismus vorgeschlagen, der nur im Laserfeld möglich ist: Zunächst, so argumentierten sie, wird ein Elektron etwa durch Tunnelionisation freigesetzt und im elektrischen Feld der Lichtwelle vom Ionenrumpf weg beschleunigt. Abhängig von der Phase der Welle zum Zeitpunkt der Emission dieses Elektrons, kann es jedoch vom Laserfeld wieder zu seinem Mutterion zurückgetrieben werden, wo es durch Elektronenstoß ein zweites Elektron heraus schlägt (Rückstreumechanismus, siehe Abb. 3). Dieser Mechanismus sollte bei der Verwendung von zirkular polarisiertem Licht versagen, da dann im rotierenden elektrischen Feld alle Trajektorien den Ionenrumpf verfehlen. Diese erste Voraussage des Rückstreumodells konnte glänzend bestätigt werden [11].

Im Rückstreumodell wird das zweite Elektron emittiert, wenn das erste zum Ion zurückkommt. Voraussetzung ist eine hinreichend große kinetische Energie des zurückkehrenden Elektrons. Sie wird jedoch mit einer deutlichen Phasenverschiebung relativ zu den Maxima des Feldes erreicht. Durch diese Phasenverschiebung des Ionisationszeitpunktes erhalten die so gebildeten, doppelt geladenen Ionen den beobachteten (Abb. 2) Nettoimpuls aus dem Laserfeld.

Weitere Aufklärung lieferten kürzlich S-Matrix-Rechnungen [12] und quantenmechanische Modellrechnungen [13]. Sie liefern sehr gute Übereinstimmung mit den beobachteten Doppelionisationsraten und mit den gemessenen Ionenimpulsen. Sie zeigen zudem, dass die Wechselwirkung des Feldes mit den beiden Elektronen im Endzustand für die im Experiment beobachtete Doppelstruktur im Impulsspektrum verantwortlich ist.

Elektronenpaare sind korreliert

Was geschieht nun mit den beiden Elektronen?

In welche Richtung werden sie emittiert? Ein erster Schritt, um diese Frage zu beantworten, gelang uns in einem Experiment zur Doppelionisation von Argon [14]. In Abb. 4a ist die Korrelation zwischen den Impulsen der beiden Elektronen aufgetragen. Die horizontale Achse zeigt die Impulskomponente eines der beiden Elektronen parallel zur Polarisationsrichtung des Laserstrahls, die vertikale Achse die gleiche Impulskomponente des anderen Elektrons. Werden beide in die gleiche Richtung emittiert, liegen die Ereignisse im ersten oder dritten Quadranten. Elektronen, die in entgegengesetzte Richtungen emittiert werden, liegen

im zweiten und vierten Quadranten. Sind die Elektronen unabhängig voneinander, ist die Verteilung isotrop. Das Experiment (Abb. 4a) zeigt für eine Lichtintensität, bei der die Doppellionisation nicht sequentiell verläuft, eine starke Korrelation der Elektronenimpulse: Am wahrscheinlichsten werden beide Elektronen in dieselbe Halbebene mit ähnlichen Impulsen von etwa einer atomaren Einheit (a.u.*) emittiert. Dies mag

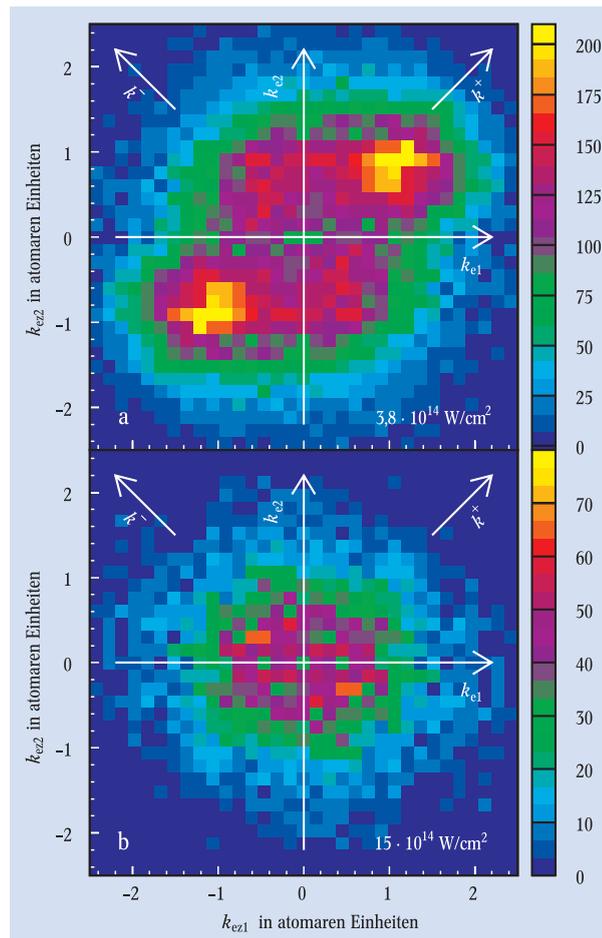


Abb. 4: Impulskorrelation zwischen den beiden Elektronen aus der Doppelionisation von Argon. Die horizontale Achse zeigt die Komponente des Impulses eines der beiden Elektronen entlang der Polarisationsrichtung des Laserstrahls, die vertikale Achse den entsprechenden Impuls des zweiten Elektrons. Farblich kodiert ist die Anzahl der registrierten Ereignisse. Bei nichtsequentieller Doppelionisation werden die Elektronen in die gleiche Halbebene emittiert (oben), bei sequentieller Doppelionisation verschwindet die Korrelation [14].

zunächst erstaunen, da die beiden Elektronen sich ja abstoßen. Es ist zudem genau das Gegenteil von dem, was man bei der Doppelionisation durch ein einzelnes hochenergetisches Photon hat. Im Laserfeld wirkt der Abstoßung die Beschleunigung durch das elektrische Feld der Lichtwelle entgegen. Sie treibt die beiden Elektronen in die gleiche Richtung. Offensichtlich dominiert hier der Einfluss des Lichtfeldes über die Elektron-Elektron-Abstoßung. Eine klassische Abschätzung der Impulsaufnahme der Elektronen aus dem Feld im Rahmen des Rückstreumodells ergibt etwa den beobachteten Impuls von 1 a.u.

Erhöht man die Lichtintensität so weit, dass die Doppelionisation sequentiell verläuft, so geht die Korrelation zwischen den beiden Elektronen verloren (Abb. 4b), ähnlich wie die Doppelstruktur in den Impulsverteilungen der Ionen verschwindet (Abb. 2b).

Weitere Schritte

Die Experimente mit Titan-Saphir-Lasern ($\hbar\omega = 1,5$ eV) auf der einen Seite, bei denen 50 oder mehr Photonen absorbiert werden, und mit Synchrotronstrahlung auf der anderen Seite [3, 15], bei denen nur ein Photon involviert ist, sind offensichtlich nur zwei

*) Eine a.u. entspricht dem mittleren Impuls eines 1s-Elektrons im H-Atom

extreme Fälle. Mit dem Freie-Elektronen-Laser (im Rahmen des TESLA-Projektes) am DESY wird sich in wenigen Jahren aufklären lassen, wie diese Bereiche zusammenhängen. Hier werden erstmals Lichtintensitäten und Photonen-Energien zugänglich sein, die z. B. die Zwei-Photonen-Doppelionisation am Helium möglich machen.

Die experimentellen Möglichkeiten, Phänomene in Laserfeldern, bei Ionenstößen und mit Synchrotronstrahlung kinematisch vollständig zu untersuchen, sind noch relativ jung. Diese neuen Techniken bieten heute erstmals die Möglichkeit, Mehrteilchendynamik von atomaren und molekularen Systemen auf breiter Basis systematisch zu untersuchen. Die gekoppelte Bewegung mehrerer Elektronen (dynamische Korrelation) stellt nicht nur eines der ältesten und hartnäckigsten Probleme der Quantenmechanik dar, sondern sie bestimmt auch über weite Bereiche die Struktur und die Eigenschaften unserer makroskopischen Welt, von Effekten in Festkörpern wie der Supraleitung bis zur Steuerung chemischer Reaktionen.

Danksagung

Wir danken T. Weber, G. Urbasch, M. Vollmer, C. Trump und den Mitgliedern der Gruppen in Freiburg, Frankfurt, Gießen, Marburg und Berlin für ihre unermüdliche Mitarbeit am Experiment, H. Schmidt-Böcking, W.W. Rühle, J. Ullrich und W. Sandner für dauernde Unterstützung, A. Becker, F. H. M. Faisal, R. Kopold und W. Becker für vielfältige Diskussionen. Die Experimente wurden durch die DFG, GSI und das Leibniz-Programm der DFG unterstützt. R. D. dankt für die Förderung durch die DFG im Rahmen des Heisenbergprogramms.

Literatur

- [1] M. Göppert-Mayer, *Ann. Phys. Lpz.* **9**, 273 (1931).
- [2] M. Protopapas, C. H. Keitel und P. L. Knight, *Physics Reports* **60**, 389 (1997).
- [3] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer und H. Schmidt-Böcking, *Phys. Rep.* **330**, 96 (2000).
- [4] J. Ullrich, R. Moshhammer und R. Dörner, *Phys. Bl.*, Februar 1998, S. 140.
- [5] Th. Weber, M. Weckenbrock, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, G. Urbasch, M. Vollmer, H. Giessen und R. Dörner, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 443 (2000); *J. Phys. B* **33**, L127 (2000).
- [6] B. Walker, B. Sheehy, L. F. DiMauro, P. Agostini, K. H. Schafer und K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 1227 (1994).
- [7] S. Larochelle, A. Talebpour und S. L. Chin, *J. Phys* **B31**, 1201 (1998).
- [8] R. Moshhammer, B. Feuerstein, W. Schmitt, A. Dorn, C. T. Schöter, J. Ullrich, H. Rottke, C. Trump, M. Wittmann, G. Korn, K. Hoffmann und W. Sandner, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 44 (2000).
- [9] K. J. Schafer, Baorui Yang, L. F. DiMauro und K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1599 (1993).
- [10] P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
- [11] D. N. Fittinghoff, P. R. Bolton, B. Chang und K. D. Kulander, *Phys. Rev.* **A49**, 2174 (1994).
- [12] A. Becker und F. H. M. Faisal, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3546; *J. Phys. B.* **32**, L335; *Phys. Rev.* **A59**, R1742 (2000).
- [13] R. Kopold, W. Becker, H. Rottke und W. Sandner, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 371 (2000).
- [14] Th. Weber, H. Giessen, M. Weckenbrock, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, G. Urbasch, M. Vollmer und R. Dörner, *Nature* **404**, 658 (2000).
- [15] J. Briggs und V. Schmidt, *J. Phys.* **33**, R1 (2000).