

# Die „Blasenkommer“ der Atomphysik

Von Otto Sterns Molekularstrahlmethode zum COLTRIMS-Reaktionsmikroskop

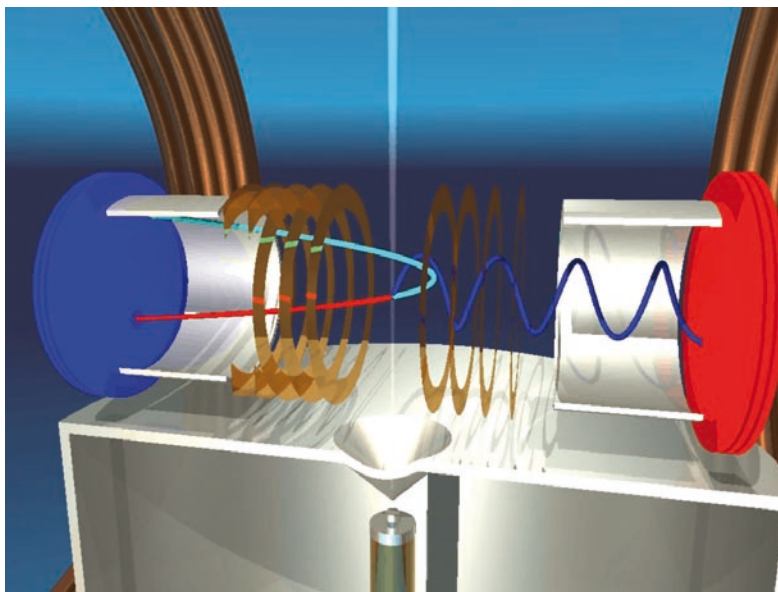
Horst Schmidt-Böcking

Die „Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy“ (COLTRIMS) ist eine bildgebende Technik, mit der sich die Bewegungen von Elektronen und Kernen in Atom- und Molekülreaktionen sichtbar machen lassen. Dabei ist es nicht nur möglich, die kinetischen Energien einzelner Teilchen zu messen, sondern die komplexen Mehrteilchenkorrelationen als Ganzes unter die Lupe zu nehmen. COLTRIMS-Apparaturen gehören heute zur Standardausrüstung an Synchrotronstrahlungsquellen und Ultrakurzzeit-Laserlabors in aller Welt.

Die mikroskopische Welt der Atome bliebe uns ohne technische Hilfsmittel prinzipiell verborgen. Erst vor rund hundert Jahren entwickelte man Mikroskopsysteme und andere Messverfahren, mit denen sich die Existenz der Atome nachweisen und ihre Struktur untersuchen ließ. Zu den Pionieren gehört Otto Stern, dem es 1919 mit seiner Molekularstrahlmethode erstmals gelang, Quanteneigenschaften an einzelnen separierten Atomen zu messen.

Seither war es ein Wunschtraum der Forscher, ein Mikroskop mit einer so guten Auflösung in „Ort und Zeit“ zu entwickeln, dass die mikroskopischen und extrem schnellen korrelierten Bewegungen in Mehrerelektronenatomen direkt sichtbar werden. Wegen der hohen Elektronengeschwindigkeiten in Atomen müsste dieses Mikroskop ein zeitliches Beobachtungsfenster von nur wenigen Attosekunden haben. Werner Heisenberg diskutierte 1927 in seiner berühmten Arbeit über die Unschärfe von Streumessungen in der Quantenwelt den Einsatz einer „ $\gamma$ -Kamera“ zur Ortsbestimmung von Elektronen, bei der die Wellenlänge der benutzten Photonen nur hinreichend klein und die Belichtungszeit nur hinreichend kurz gemacht werden müssten [1].

Wie Heisenberg ausführte, liefert jedes einzelne Streueignis aus Prinzip nur einen Impulstransfer und niemals einen Ort. Erst aus vielen aufeinander folgenden Streuprozessen (Streuverteilung) lässt sich ein „mittlerer“ Ort ermitteln. Eine genügend genaue Ortsbestimmung wäre nur dann durchführbar, wenn das Teilchen in den aufeinander folgenden Einzelstreuungen während der gesamten Messdauer seinen Ort „beibehalte“. Da die Quantenteilchen sich bewegen und nach jedem Streuprozess einen Kick erhalten, ändern sie jedoch ständig ihren Ort. Wollte ein Experimentator gar mit subatomarer Auflösung das Innere



Beim COLTRIMS-Reaktionsmikroskop [2] kommt von unten der extrem kalte, durch einen Skimmer kollimierte Atom-/Molekülstrahl, der in der Mitte des Mikroskopes einen Photonen-, Ionen- oder Elektronenstrahl kreuzt. Im Kreuzungspunkt finden die Fragmentierungen statt. Die geladenen Bruchstücke wer-

den in überlagerten elektrostatischen und magnetostatischen Feldern auf zwei orts- und zeitaufösende Detektoren (blau: Ionendetektor, rot: Elektronendetektor) abgebildet. Die blaue Linie deutet eine virtuelle Elektronenbahn, die rote und türkisene Linie deuten Bahnen von Ionenfragmenten an.

eines Atoms, d. h. die Elektronen, sichtbar machen, dann würde er nicht erfahren, an welchem Elektron des Atoms ein bestimmtes Photon gestreut wurde. Ein  $\gamma$ -Mikroskop wird also nur den mittleren Ort eines Atoms oder Kerns sichtbar machen können, aber niemals eine Aussage über die einzelnen Elektronenorte im Augenblick der Messung erlauben.

Ein Mikroskop mit subatomarer Auflösung für die Beobachtung der inneren räumlichen und zeitlichen

## KOMPAKT

- COLTRIMS beruht darauf, dass eine Kombination von schwachen elektrischen und magnetischen Feldern am Reaktionsort alle Ionen eines fragmentierten Moleküls auf einen großflächigen ortsauflösenden Detektor leitet und alle dazugehörigen Elektronen auf einen zweiten.
- Aus den für jedes Teilchen gemessenen Auftrefforten und Flugzeiten erhält man die Richtung und die kinetische Energie, mit der es erzeugt wurde.
- Dadurch lassen sich auch für Teilchen mit extrem niedriger Energie in molekularen Prozessen vollständige Bilder einer Reaktion im Impulsraum aufnehmen.

**Prof. Dr. Horst Schmidt-Böcking**, Institut für Kernphysik, Goethe-Universität, Max-von-Laue-Str.1, 60438 Frankfurt am Main – Preisträgerartikel anlässlich der Verleihung der Stern-Gerlach-Medaille 2010 auf der 74. Jahrestagung der DPG in Bonn.

1) Ein Elektron mit der kinetischen Energie von 13,6 eV hat den Impuls von 1 a. u.  $= \hbar/e_0 = m_e c \alpha \approx 2 \cdot 10^{-24} \text{ kg m s}^{-1}$ .

Struktur von Elektronensystemen in Atomen und Molekülen kann es daher aus prinzipiellen Gründen niemals geben. Atome und Moleküle sind nach den Gesetzen der Quantenmechanik „nichtlokale“ Objekte. Ort und Zeit sind in einer Einzelmessung keine Observablen. Impulse von Quantenteilchen sind jedoch zu jedem Zeitpunkt messbare Observable.

## Fragmente als Sensoren

Würde man zu einem gegebenen Zeitpunkt im Atom oder Molekül plötzlich die Coulomb-Kraft abschalten (Heisenberg diskutiert diese Idee schon in [1]), dann würden alle Elektronen und Kerne des Quantenobjekts geradlinig in die „makroskopische Welt des Nachweisystems“ weiterfliegen. Wegen der strikten Impulserhaltung lässt sich so der mikroskopische Impuls (nicht jedoch der Ort) perfekt in die makroskopische Welt abbilden und jedes Fragment mit einem orts- und zeitauflösenden Detektor nachweisen. Durch Messung der Flugrichtung und der Flugzeit kann man somit die mikroskopische Geschwindigkeit und damit bei Kenntnis der Masse auch den Impuls mit sehr hoher Präzision bestimmen. Die innere korrelierte Bewegungsstruktur der Quantenwelt ist damit viel einfacher zu mikroskopieren, als man nach dem oben Gesagten erwarten würde. Statt mit vielen Photonen von außen am Quantenobjekt zu streuen, muss man seine Bestandteile selbst zu aktiven Sensoren des Experimentes machen.

Natürlich lässt sich die Coulomb-Kraft in einem Atom nicht plötzlich abschalten. Aber es ist möglich, das Quantenobjekt plötzlich sehr hoch anzuregen, ohne seine inneren Bewegungsgrößen merklich zu stören und „entscheidend zu ändern“. Dieses hoch angeregte Quantenobjekt kann dann aus sich selbst „instantan“ zum Teil oder auch vollständig in Einzelbausteine

fragmentieren. Da im Quantenobjekt dabei die innere Verschränktheit erhalten bleiben sollte, sollten bei der Fragmentierung auch die Korrelationen im Bewegungsraum weitgehend erhalten bleiben und somit für den Beobachter in der Makrowelt zu messen sein. Wichtig ist dabei, dass in diesem Anregungsprozess kaum Impuls, aber viel Energie vom Projektil auf das Quantenobjekt übertragen wird.

Die Absorption von realen oder virtuellen Photonen kommt diesem Ziel sehr nahe, da Photonen viel Energie, aber kaum Impuls übertragen. Absorbiert beispielsweise ein Heliumatom ein reelles Photon von 200 eV, so fragmentiert das angeregte Atom mit einigen Prozent Wahrscheinlichkeit vollständig. Dabei wird vom Photon auf den Helium-Schwerpunkt ein Impuls von nur 0,05 a. u.<sup>1)</sup> übertragen, die Fragmente fliegen aber wegen der schon vorher im Grundzustand vorhandenen Bewegung mit viel größerem Impuls auseinander – in der Summe meist mehr als 4 a. u.. Die vorher im Grundzustand vorhandenen korrelierten Bewegungsstrukturen sollten sich daher ohne Störung durch die Reaktion auf den Endzustand abbilden.

Verwendet man schnelle schwere Ionen, die Atome aus sehr großen Abständen beim Vorbeiflug mittels Übertragung von virtuellen Photonen fragmentieren, dann lassen sich sehr hohe Ionisationsgrade erreichen. So kann ein Uranion mit 15,5 MeV/u in einem Einzelstoß Argon innerhalb von nur wenigen Attosekunden komplett fragmentieren, d. h. vollständig ionisieren. Wegen des extrem starken virtuellen Photonenfeldes von  $10^{18}$  bis  $10^{22}$  Watt/cm<sup>2</sup> erreichen die Wirkungsquerschnitte für die Erzeugung hochgeladener Ionen die geometrische Größe eines Atoms [3, 4]. Der dabei vom Projektil übertragene Gesamtimpuls bleibt verschwindend klein im Vergleich zu den Impulsen der wegfliegenden Fragmente [4].

Observablen der Bewegung sind unter anderem Geschwindigkeit, Impuls und Drehimpuls, wobei die beiden letzteren für ein abgeschlossenes System von einer Attosekunde auf die nächste exakt erhalten bleiben! In diesen Größen gibt es auch für kleinste Zeitintervalle keine Unschärfe, solange man den Messort nicht lokalisiert, d. h. hinreichend groß macht. Bei einer Targetausdehnung von nur 0,01 mm ( $10^5$  a. u.) würde dies dem Experimentator in der Messung eine theoretische Impulsgenauigkeit von  $10^{-5}$  a. u. ermöglichen. Diese Impulsunschärfe entspricht einer kinetischen Energie beim Elektron von einem Nanoelektronenvolt. Experimentell kann man solche gute Auflösungen erreichen, wenn die makroskopischen Flugzeitstrecken für die Fragmente hinreichend lang sind.

## Kollimiert und kaltgestellt

Doch ist ein solches Mikroskop, das die Impulse aller Fragmente in Koinzidenz messen kann, experimentell realisierbar? Und wenn ja, welche Impulsaufösungen wären damit zu erzielen? Aus der Hochenergiephysik ist bekannt, dass sich mit Hilfe der Blaskammer die



Abb. 1 Diese Gedenktafel der Frankfurter Universität würdigt die wissenschaftlichen Verdienste von Otto Stern und Walther Gerlach. Stern erhielt 1943 den Physik-Nobelpreis für die Messung des

magnetischen Moments des Protons und die Entwicklung seiner Molekularstrahlmethode, die eine unverzichtbare Grundlage für COLTRIMS bildet.

Trajektorien aller Fragmente und damit ihre Impulse gleichzeitig bestimmen lassen. Aufgrund ihrer hohen Energie erzeugen die Fragmente selbst dort Ionisationspuren im Detektorvolumen, die man optisch und elektronisch registrieren kann. Ein solches Verfahren der Spurenerkennung funktioniert jedoch für die extrem niederenergetischen Fragmente in der Atom- und Molekülphysik nicht.

Impulsmessungen an niederenergetischen Quantenobjekten werden seit rund hundert Jahren durchgeführt. Otto Stern gelang 1919 ein entscheidender Durchbruch in der Impulsauflösung (Abb. 1). In dem Pionierexperiment der Molekularstrahltechnik konnte er mit Hilfe einer Art Streak-Kamera zeigen, dass kollimierte Atomstrahlen bei einer festen Verdampfungstemperatur eine relativ scharfe Geschwindigkeitsverteilung haben [5]. Durch geschickte Kollimierung von Gasstrahlen erreichte er im Transversalimpuls (Streuwinkel) Auflösungen von 0,001 a. u. Das war bereits so gut, dass es seinem Mitarbeiter Robert Otto Frisch gelang, den Rückstoßimpuls vom Photon auf Atome nachzuweisen [6].

Das COLTRIMS-Reaktionsmikroskop [2] wäre ohne Sterns Molekularstrahlmethode nicht realisierbar. Mit ihrer Hilfe werden die Quantenobjekte präpariert und vor der Fragmentierung in einen eng kollimierten Impulszustand gebracht. In der Regel werden diese Targetobjekte dann von einem senkrecht kreuzenden Projektilstrahl (Ionen, Elektronen, Photonen etc.) zu einem exakt bekannten Zeitpunkt ionisiert (Abb. auf S. XX). Die geladenen Bruchstücke werden dann in einem Spektrometer mithilfe von sehr genau kontrollierbaren elektrischen und magnetischen Feldern auf große orts- und zeitauflösende Detektoren geleitet. Die negativ geladenen Fragmente fliegen zum Elektronendetektor, die positiv geladenen zum Ionen-detektor in der entgegengesetzten Richtung.

Anhand des Auftrefforts und der Flugzeit lässt sich die Bahn eines jeden Fragments ermitteln und daraus mit hoher Auflösung dessen Anfangsimpuls bestimmen – ganz ähnlich wie bei einem Steinwurf im Schwerfeld. Die Detektoren mit der nachgeschalteten Elektronik können auch mehrere Fragmente aus der gleichen Reaktion gleichzeitig erfassen [7].

Um eine sehr gute Impulsauflösung zu erreichen, ist es unverzichtbar, die einzelnen Atome oder Moleküle zu kühlen (daher rührt die Bezeichnung „Cold Targets“). Lässt man Gas unter relativ hohem Druck von einigen Bar durch eine 20 bis 30 Mikrometer große runde Lochblende expandieren, bildet sich ein Überschallstrahl von Molekülen aus, der so stark verbesserte Eigenschaften hat, dass man eine extrem hohe Auflösung für alle drei Impulskomponenten erreichen kann.

Durch Kühlung der Targetatome in magneto-optischen Fallen lässt sich die Auflösung noch wesentlich verbessern [8]. Die adiabatische Expansion in der Lochblendendüse fokussiert die austretenden Atome bzw. Moleküle des Gases in einen engen Geschwindigkeitsraum. Wird dieser expandierte Strahl dann durch einen „Skimmer“ in transversaler Richtung ausgeblendet und

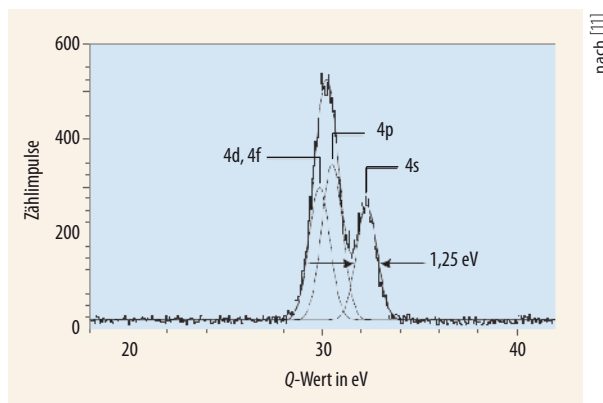


Abb. 2 COLTRIMS-Reaktionsmikroskope erlauben es, den elektronischen Energieverlust (Q-Wert) hochpräzise zu bestimmen und die elektronischen Zustände, die im Ion-Atom-Stoß involviert sind, hochauflösend zu spektroskopieren, wie hier für die Elektronentransferreaktion  $63 \text{ keV Ne}^{7+}$  auf He gezeigt.

das Gas vor der Expansion noch zusätzlich auf wenige Kelvin gekühlt, so erhält man einen Molekularstrahl, der in transversaler und longitudinaler Ausdehnung ein sehr scharfes Impulsprofil hat, das bei vorgekühltem Helium-Strahl rund 0,01 a. u. Unschärfe entspricht.

Diesen Molekularstrahl kreuzt man unter  $90^\circ$  im Spektrometer mit dem Projektilstrahl. Die Intensität beider Strahlen ist so niedrig, dass im relevanten Zeitfenster immer nur ein Projektil mit einem Atom oder Molekül des Ultraschallstrahles wechselwirkt. Das durch das Projektil angeregte oder ionisierte Atom/Molekül fragmentiert und sendet Elektronen aus. Diese Methode („multi fragment imaging“) beruht auf Flugzeitmessungen und erfordert daher, den Fragmentierungszeitpunkt besser als auf eine Nanosekunde genau zu kennen. Aus diesem Grunde eignen sich als Projektilstrahlen nur gepulste Strahlen von Photonen, Elektronen oder Ionen. Bei Ionen als Projektile kann der Nachweis des gestreuten Projektils als Zeitpunkt der Fragmentierung verwendet werden. Für den orts- und zeitauflösenden Nachweis dienen so genannte Delay-Line-Detektoren [7], in denen das geladene Fragment in Multikanalplatten eine räumlich lokalisierte Elektronenlawine induziert. Diese Lawine wird von einer gekreuzten Drahtanode registriert, über die vom Auftreffort zu ihren jeweiligen Enden über eine Delay-Line-Anordnung ein schnelles elektronisches Signal läuft. Aus der Zeitdifferenz der ankommenden Signale ergibt sich der Detektorort. Je nach Anzahl der Detektoren und Drahtebenen der Detektoranoden lassen sich dann bis zu 20 oder mehr Zeitparameter „Event für Event“ im PC speichern und damit auf jedem Detektor pro Event mehrere Fragmente parallel detektieren [9].

Aus den gespeicherten Rohdaten berechnen Analyseprogramme für jedes Fragment die Bahn und daraus den Anfangsimpuls. Es entsteht dann ein virtuelles Trajektorien-Zwischenbild, wie wir es von der Blasen-kammer aus der Hochenergiephysik kennen. Aus diesem Grunde wird auch das COLTRIMS-Reaktionsmikroskop häufig als die „Blasen-kammer“ der Atomphysik bezeichnet, obwohl die Fragmente kinetische Energien von wenigen Elektronenvolt oder sogar unter Milli-

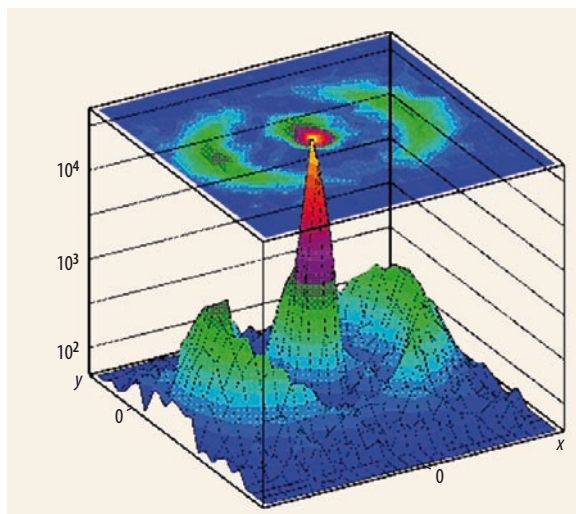


elektronenvolt besitzen und somit im Detektormaterial selbst keine sichtbaren Spuren erzeugen können.

## Erfolgreicher Einsatz

COLTRIMS-Reaktionsmikroskope sind jetzt seit über zwei Jahrzehnten erfolgreich im Einsatz. Mit ihrer Hilfe ließen sich in zahlreichen Pionierexperimenten neue Einblicke in die korrelierte Dynamik von atomaren und molekularen Vielteilchenreaktionen gewinnen. Die ersten Prototypen kamen zum Einsatz, um in hochenergetischen Ion-Atom-Stößen bei kleinsten Projektilablenkwinkeln – also sehr großen Kernabständen – beispielsweise die Wahrscheinlichkeiten für Vielfachionisationen zu messen. In der Pionierarbeit gelang es durch Messung der Transversalimpulse der Rückstoßionen, Ionisationsprozesse im Ablenkwinkelbereich um ein Mikrorad, d. h. für sehr große Stoßparameter, zu untersuchen [10]. Dabei zeigte sich, dass das Rückstoßion im streifenden Stoß durch das virtuelle Photonenfeld des Projektils hoch ionisiert werden kann, obwohl es dabei meist weniger als ein a. u. Impuls vom Projektil übertragen bekommt.

In hochenergetischen Ion-Atom-Stößen, in denen nur Elektronen zwischen gebundenen Zuständen von Projektil und Target transferiert werden, ermöglichen COLTRIMS-Reaktionsmikroskope außerdem eine hochpräzise Bestimmung des elektronischen Energieverlustes des Reaktionsprozesses ( $Q$ -Wert) und somit eine hochauflösende Spektroskopie der elektronischen Zustände, die im Ion-Atom-Stoß direkt involviert sind. Bei der normalen hochauflösenden Photon- oder Elektronenspektroskopie in schnellen Ion-Atom-Stößen kann man nur Übergänge sehen, die „lange“ nach der Anregung zerfallen und somit wegen Kaskadenprozessen kaum Information über die primär beteiligten Zustände erlauben. Die Impulskomponente des Rückstoßions in Projektilrichtung ( $z$ -Richtung) ist ein direktes Maß



**Abb. 3**  $\text{He}^{+}$ -Impulsverteilung in der  $x, y$ -Ebene für Photonabsorption (ca. 8,8 keV) und Compton-Streuung [21]. Zentriert um Impuls Null sieht man die Compton- und als „Kraterrand“ bei hohen Impulsen die Photoeffektprozesse. Das Photon ist linear polarisiert, der  $\mathbf{E}$ -Vektor zeigt in  $x$ -Richtung.

für den elektronischen  $Q$ -Wert der in einer Projektil-Target-Reaktion involvierten Schalenzustände. Beim Stoßsystem 63 keV  $\text{Ne}^{7+}$  auf He erreicht man bei einer Rückstoßionenimpulsauflösung (FWHM) von besser als 0,1 a. u. eine  $Q$ -Wertauflösung von 1,25 eV [11] und kann damit direkt sehen, in welchen angeregten Zustand im Neon-Ion das Elektron transferiert wurde (Abb. 2). Man kann sogar die Feinstrukturzustände in hochenergetischen Ion-Atom-Stoßprozessen auflösen und Energieverluste von schnellen Ionen mit bisher nie erreichter Auflösung bestimmen.

Dieses Messverfahren ist auch einsetzbar, um an höchstgeladenen schweren Ionen (z. B. ein  $\text{U}^{91+}$ -Strahl mit 500 keV) mit höchster Präzision die Lamb-Shift zu vermessen. Die Rückstoßionenspektroskopie könnte Linienbreiten von weniger als 0,1 eV (FWHM) ergeben, was auch modernste Halbleiter-Kryodetektoren niemals leisten könnten.

Die COLTRIMS-Reaktionsmikroskope finden heute breite Anwendung zur Untersuchung von Photoionisationsprozessen von Atomen, Molekülen und Festkörperoberflächen durch einzelne Photonen (Synchrotronstrahlung) oder durch Laserstrahlen. In den letzten Jahren hat die Technik Einzug in viele Femto- und Attosekundenlaserlabors gehalten, da sie ideale „Augen“ darstellt, die Mehrteilchenprozesse und deren Dynamik vollständig zu visualisieren [12]. Die folgenden Beispiele illustrieren den Einsatz von COLTRIMS-Reaktionsmikroskopen bei Reaktionen, die von einzelnen Photonen oder von Laserpulsen induziert werden. Dabei steht die Bedeutung der Messmethode im Vordergrund und nicht die Physik des Reaktionsprozesses.

## Elektronenkorrelationen im Helium

Das Heliumatom ist das Musterbeispiel von Elektronenkorrelation in der Atomphysik. Ein Maß für diese Korrelation ist das Verhältnis von Einfach- zur Doppelionisation von Helium durch ein Photon. Für den Test der zahlreichen über Jahrzehnte entwickelten theoretischen Modelle war es von zentraler Bedeutung zu wissen, wie wahrscheinlich die Einfach- und Doppel-Photoionisation von Helium im Grundzustand ist, wenn es durch ein einzelnes hochenergetisches Photon (5 bis 20 keV) entweder durch Photoabsorption oder Compton-Streuung ionisiert wird. In diesem Hochenergielimit (emittiertes Elektron hat dann auch einen entsprechend großen Impuls) beruht die Doppelionisation (Shake-Off-Prozess) fast ausschließlich auf der Elektronenkorrelation im Helium-Grundzustand. Die Absorption des hochenergetischen Photons kann nur erfolgen, wenn das gebundene Elektron im Helium-Grundzustand bereits diesen hohen Impuls hat, was wegen der Gesamtimpulserhaltung des Helium-Atoms eine starke Korrelation zwischen beiden Elektronen erfordert. Der Compton-Prozess hingegen erfolgt meist an gebundenen Elektronen mit kleinem Impuls, für welche die Theorie andere Korrelationsstärken voraussetzt. Frühere Verfahren, die z. B. die emittierten Elektronen oder den Ladungszustand des Rückstoßions

messen, können Photon- und Compton-Prozesse nicht trennen. Die wichtige Signatur zur experimentellen Unterscheidung der beiden Ionisationsprozesse ist der jeweilige Impuls des  $\text{He}^{1+/2+}$ -Rückstoßions, den man mit COLTRIMS erstmals mit hinreichend guter Impulsaufösung messen konnte. Im Falle des Photoeffektes kompensiert der Helium-Kern, d. h. das  $\text{He}^{1+}$ -Rückstoßion, den hohen Impuls des schnellen Elektrons, im Compton-Prozess ist der Kern nur Beobachter und besitzt einen sehr kleinen Impuls (Abb. 3). Mit der COLTRIMS-Technik war es erstmals möglich, die für Photo- und Compton-Ionisation unterschiedlichen Doppelsonisationswirkungsquerschnitte von Helium zu messen und somit eine klare Aussage über die Gültigkeit der Theorien von Shake-Off-Prozessen zu machen [13].

### Kernbewegung als Präzisionsuhr

Bei Molekülfragmentierungen, z. B. bei der sog. Coulomb-Explosion oder bei schnellen Dissoziationsreaktionen, lässt sich die hier nahezu klassische, d. h. in Ort und Zeit lokalisierbare Kernbewegung als eine hochpräzise Uhr verwenden, die mit Femtosekundengenauigkeit die Reaktionsdynamik taktet. Der Photoionisationsprozess mit Emission des Photoelektrons dauert nur Bruchteile einer Femtosekunde, und die Veränderung des Coulomb-Potentials induziert instantan eine Kernbewegung auf der neuen Potentialfläche. Abhängig von den nun zeitlich veränderlichen Kernabständen variieren die Energien der molekularen Orbitale und damit auch die Energien der im Molekül erfolgenden elektronischen Übergänge. Kommt es z. B. nach Doppelionisation in einem diatomigen Molekül zur gegenseitigen Abstoßung der nun geladenen Ionen (Coulomb-Explosion), dann reflektiert die kinetische Energie der Ionenfragmente das Coulomb-Potential beim internuklearen Abstand, bei dem die Ionisation erfolgte. Somit kann man aus den Ionen-Fragmentimpulsen den internuklearen Abstand und wegen der klassischen Kernbewegung auch die Zeitabläufe der Reaktionsdynamik bestimmen. Im schwach gebundenen Ne-Dimer (mit einem internuklearen Abstand von 0,31 Nanometer und einer Bindungsenergie von  $1,5 \cdot 10^{-3}$  eV) gelang es so, durch eine Vierfragmentkoinzidenz (zwei Ne-Ionen, zwei Elektronen) die im Ne-Dimer vorausgesagten vorher experimentell nicht direkt erforschten Zerfallsprozesse (Interatomic-Coulombic-Decay, ICD) eindeutig zu identifizieren und ihre Reaktionsdynamik mit Femtosekundengenauigkeit zu vermessen [14, 15].

### Elektronen im starken Laserfeld

In starken Laserfeldern herrschen wieder völlig andere Ionisationsmechanismen vor. Deren Dynamik lässt sich mithilfe des Reaktionsmikroskopes in bisher nicht erreichter Vollständigkeit untersuchen. Ein starkes Feld von  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>, erzeugt von Photonen mit 800 nm Wellenlänge, beschleunigt Elektronen und Ionen, nachdem sie aus dem Atomverbund gelöst wurden. Eine Messung des Impulses der Teilchen entspricht

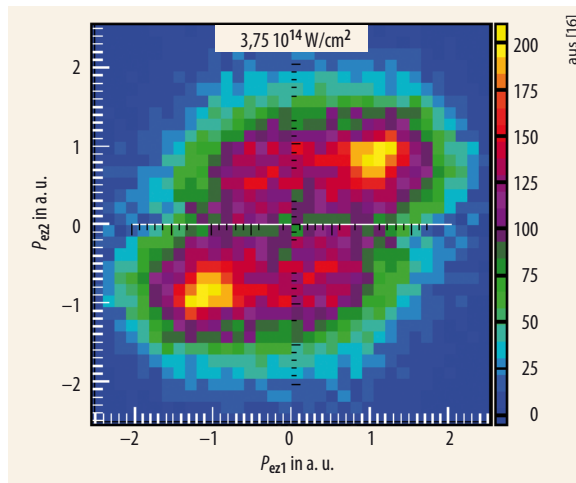


Abb. 4 Zweielektronenimpulskorrelation für die Zweifachionisation von Ar im starken Laserfeld.

deshalb einer Messung der Lichtfeldphase des Laserfeldes, bei der die Teilchen beschleunigt wurden. Misst man nun mit COLTRIMS in Koinzidenz die Impulse aller in einem Laserfeld freigesetzten Elektronen, so kann man für alle Teilchen die Impulskorrelationen mit sehr hoher Auflösung detektieren und daraus bestimmen, zu welchem Zeitpunkt relativ zur Laserphase die Elektronen freigesetzt wurden. Das Laserfeld spielt so die Rolle eines ultraschnellen Uhrwerks, die Impulse entsprechen den Uhrzeigern, die man mittels COLTRIMS abliest. Bei 800 nm entspricht ein Zyklus 2,5 Femtosekunden, und die Ablesegenauigkeit der „Uhrzeiger“ fällt besser als 1/200 eines Umlaufs aus, was einer Zeitaufösung von 10 Attosekunden entspricht. Ein Beispiel, in dem diese Technik eingesetzt wurde, sind die mit einem Laserpuls aus Argon-Atomen freigesetzten zwei Elektronen (Abb. 4) [16]. Entlang der horizontalen und vertikalen Achse sind die Impulse der beiden Elektronen parallel zum Laserfeld aufgetragen, welche den relativen Phasen entsprechen, zu denen diese Elektronen freigesetzt wurden. Die Regionen hoher Intensität im ersten und dritten Quadranten zeigen, dass beide Elektronen korreliert ins Feld entkommen. Das dabei emittierte Elektron nimmt im Feld Energie auf und wird vom Laserfeld zurück auf sein eigenes Mutterion geschleudert, d. h. die Doppelionisation erfolgt durch „Rescattering“ des ersten Elektrons auf das Mutteratom. Dort gibt es seine Energie in einem Stoß mit dem zweiten Elektron ab, sodass sich zwei Elektronen zusammen nachweisen lassen. Die hier beobachtete korrelierte Elektronenemission war der erste direkte Beweis für den theoretisch vorausgesagten „Rescattering Process“ [17].

### Neue Perspektiven

Mehr als hundert Labors weltweit setzen COLTRIMS heute in in der Atom-, Molekül- und Oberflächenphysik ein. Ständig kommen neue Anwendungen hinzu. Wer kann beispielsweise heute mit Sicherheit ausschließen, dass aufgrund von Vielteilcheneigenschaften in

der Dynamik von gebundenen verschränkten Systemen noch weitere dynamische Erhaltungsgrößen (z. B. Runge-Lenz-Vektor) existieren oder Symmetrien gebrochen werden? Mithilfe von zirkular polarisiertem Laserlicht lassen sich die Drehimpulse von Atomen oder Molekülen im Anfangszustand ausrichten. Diese polarisierten Quantenobjekte fragmentieren durch ein zirkular polarisiertes Photon in drei oder mehr Teilchen, und deren Impulse sind mit hoher Auflösung messbar. Die beiden im Eingangskanal definierten Axialvektoren lassen sich spiegeln. Im Endzustand müssen mindestens drei oder vier Bruchstücke in Koinzidenz nachgewiesen werden. Sollte man in den durch das Vektorprodukt der Axialvektoren definierten Halbkugeln nicht symmetrische Streuverteilungen in der Vielteilchenfragmentierung beobachten und sollten diese Verteilungen ein unerwartetes Spiegelungsverhalten zeigen, wäre das für die Theorie der quantenmechanischen Vielteilchendynamik von fundamentaler Bedeutung.

Relativistische Schwerionenstrahlen (z. B.  $U^{92+}$  mit 20 GeV/u), wie sie in naher Zukunft bei der GSI-Darmstadt zur Verfügung stehen<sup>+)</sup> , ermöglichen mit Ionenstrahlen neue „Pump-Probe“-Verfahren (Ionen induzierte Pump- und Probe-Technik, IPUP), die Zeptosekunden-Schnappschüsse in der Quantendynamik möglich machen. Durch die relativistische Retardierung schrumpft das vom Projektil auf das Targetsystem agierende virtuelle Photonfeld (bis  $10^{22}$  W/cm<sup>2</sup> Stärke) auf Bruchteile einer Attosekunde [4] und ist wegen der klassischen Ionenbahn in Raum und Zeit sehr genau lokalisierbar. Man lässt nun dieses Ion mit einem Molekül mit nicht-linearer Geometrie (z. B. eine Dreieckform mit den Eckpunkten A, B und C) wechselwirken. Durch koinzidente Messung aller Ionenfragmente kann man später im Experiment die Molekül-Ionenbahn-Orientierungen und die Stoßparameter ermitteln. Für jede der verschiedenen Bahnen und Orientierungen wird man eine andere elektronische Ionisation der verschiedenen Eckpunkte (charakteristische Atome A, B und C) beobachten. Unter diesen Bahnen gibt es auch solche, wo das Projektil zuerst A angeregt oder ionisiert hat und dann z. B. einige Attosekunden später mit dem Atom C wechselwirkt. Durch Wechselwirkung mit Atom A ist im Prinzip die Gesamtwellenfunktion des Moleküls kollabiert und das Atom C sollte seinen Zustand entweder instantan oder retardiert ändern. Da der Lichtweg im Molekül länger dauert als der Flug von A nach C, könnte man durch Pumpen bei A und Proben bei C experimentell messen, wie schnell eine Wellenfunktion kollabiert. Dieses „örtliche“ Pump-Probe-Verfahren eröffnet viele andere Möglichkeiten der Untersuchung von extrem schnellen quantendynamischen Prozessen.

\*

Ich möchte langjährigen Mitarbeitern, Weggefährten und Freunden in der Atom- und Molekülphysik für die hervorragende Zusammenarbeit und Unterstützung bei der Entwicklung der COLTRIMS-Methode herzlich danken, namentlich Joachim Ullrich, Reinhard Dörner, Lew Cocke, Robert Moshhammer, Volker Mergel sowie

Ottmar Jagutzki. Die Förderung durch das BMBF (Verbundforschung Kernphysik und GSI) und durch die DFG bildete die finanzielle Grundlage dieser Forschung. Vor allem gebührt Dietrich Hartwig (BMBF) Dank, der stets in unkonventioneller Weise geholfen hat.

### Literatur

- [1] W. Heisenberg, *Z. Phys.* **43**, 3, 172 (1927)
- [2] J. Ullrich et al., *Comm. At. Mol. Phys.* **30**, 285 (1994); J. Ullrich et al., *J. Phys.* **B 30**, 2917 (1997); R. Dörner et al. *Physics Reports* **330**, 95 (2000); J. Ullrich et al., *Rep. Prog. Phys.* **66**, 1463 (2003)
- [3] S. Kelch et al. *J. Phys.* **B 18**, 323 (1985)
- [4] R. Moshhammer et al., *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3621 (1997), J. Ullrich et al. *Physikal. Blätter*, Februar 1998, S. 140
- [5] O. Stern, *Phys. Z.* **21**, 582 (1920)
- [6] O. Stern, *Z. Phys.* **39**, 751 (1926); R. O. Frisch, *Z. Phys.* **84**, 42 (1933)
- [7] O. Jagutzki et al. *Proc. SPIE* **3438**, 322 (1998), hrsg. von M. R. Descour et al., *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **49**, 2477 (2002)
- [8] B. D. DePaola, R. Morgenstern und N. Andersen in: *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics* **55**, hrsg. von E. Arimondo, P. Berman und C. Lin, Academic Press, London (2008)
- [9] R. Moshhammer und L. Foucar; MPI für Kernphysik Heidelberg, private Mitteilung (2009)
- [10] J. Ullrich und H. Schmidt-Böcking, *Phys. Lett. A* **125**, 193 (1987)
- [11] D. Fischer et al., *J. Phys. B* **35**, 1369 (2002)
- [12] R. Dörner et al., in: *Advances in Atomic and Molecular Physics* **48**, 1, hrsg. von B. Bederson und H. Walther, Academic Press, London (2002)
- [13] L. Spielberger et al., *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4615 (1995)
- [14] L. S. Cederbaum et al., *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4778 (1997); S. Scheit et al., *J. Chem. Phys.* **118**, 2092 (2003)
- [15] T. Jahnke et al., *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 163401 (2004)
- [16] T. Weber et al., *Nature* **405**, 658 (2000); R. Moshhammer et al. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 447 (2000)
- [17] P. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993)

### DER AUTOR



**Horst Schmidt-Böcking** (hier mit DPG-Präsident Gerd Litfin bei der Preisverleihung in Bonn) studierte Physik in Würzburg und Heidelberg, wo er 1969 promovierte. Ab 1974 war er Hochschuldozent, ab 1977 Professor auf Zeit am Institut für Kernphysik (IKF) der Universität in Frankfurt am Main. Dort habilitierte er sich 1978. Von 1980 bis 1982 arbeitete er am Hahn-Meitner-Institut und wurde 1982 auf eine Professur an die Universität Frankfurt berufen, wo er bis zu seiner Pensionierung im Jahre 2004 blieb. Sein Arbeitsgebiet in Frankfurt war die Spektroskopie von langsamen Rückstoßionen. Diese Arbeiten führten zur Entwicklung der COLTRIMS-Methode. 2008 erhielt er als erster Deutscher den renommierten Davisson-Germer-Preis der American Physical Society.

+) [www.gsi.de/fair/experiments/sparc/index\\_e.html](http://www.gsi.de/fair/experiments/sparc/index_e.html)