



Kurzweilige Strahlung, insbesondere Röntgenstrahlung, wird seit langer Zeit dazu verwendet, die atomare Struktur von Materie zu untersuchen, das heißt, die genaue räumliche Anordnung der Atome festzustellen. Seit kurzer Zeit ist es möglich, solche Strahlung auch in Form von extrem kurzen Blitzen herzustellen. Diese Blitze sind so kurz, dass die extrem schnelle Bewegung der Atome, die in der Materie stattfindet, eingefroren erscheint. Mit einer Folge solcher Schnappschüsse wird es in Zukunft gelingen, Filmaufnahmen vom Ablauf atomarer Vorgänge herzustellen.

Momentbilder atomarer Strukturen

Den Tanz der Atome in Zeitlupe betrachten

Von Dietrich von der Linde

Die Vorstellung, dass die Materie aus Atomen aufgebaut ist, wurzelt in der Antike. Doch haben noch gegen Ende des 19. Jahrhunderts bedeutende Wissenschaftler an der Existenz von Atomen gezweifelt. So ist von Ernst Mach überliefert, dass er Atome für „metaphysischen Unsinn“ hielt und mit der spöttischen Frage reagierte, „Haben’s schon eins gesehen?“, wenn von Atomen die Rede war. In den Naturwissenschaften ist die Kenntnis der

atomaren Struktur der Materie von fundamentaler Bedeutung. Sie führt sehr oft zu neuer Erkenntnis und ist Ausgangspunkt neuer Entwicklungen. Beispielsweise begann mit der Entdeckung der Doppelhelix-Struktur der DNS (Desoxyribonukleinsäure) eine Entwicklung, die in die heutige Molekularbiologie und die Gentechnologie mündete.

Ein bedeutender erster Schritt zur Sichtbarmachung des atomaren Aufbaus der Materie war der Nach-

weis der Beugung von Röntgenstrahlung an Kristallen durch Max von Laue (1912) (Abb. 1). Ausgehend von dieser Entdeckung gelang es William Henry Bragg und William Lawrence Bragg die atomare Struktur von Kristallen zu bestimmen. Im Laufe der Zeit wurde die Methode der Röntgenbeugung zu höchster Präzision verfeinert und ist heute eines der wichtigsten Verfahren zur Bestimmung atomarer Strukturen (Abb. 2).



(1) Max von Laue (rechts) und William Lawrence Henry Bragg (links) hinter einem Tisch mit Mineralproben. Max von Laue erhielt den Nobelpreis für Physik 1914 “for his discovery of the diffraction of X-rays by crystals.” William Lawrence Bragg und sein Vater William Henry Bragg erhielten gemeinsam den Nobelpreis im folgenden Jahr “for their analysis of crystal structure by means of X-rays”.

Ein wahrhaft atemberaubender Sprung auf dem Weg zur Visualisierung von Atomen erfolgte Anfang der achtziger Jahre, als es Binnig, Rohrer und Mitarbeitern gelang, mit unvorstellbar feinen Spitzen Atome gewissermaßen abzutasten und mit Hilfe solcher Sonden Bilder einzelner Atome zu gewinnen. Die so genannte Raster-Sonden-Mikroskopie hat einen gewaltigen wissenschaftlichen Aufschwung in der Oberflächenphysik und -chemie und auch in anderen Disziplinen ausgelöst. Eindrucksvolle Beispiele von Bildern atomarer Strukturen, die mit Hilfe solcher Raster-Mikroskopieverfahren erzeugt worden sind, kann der Leser im vorliegenden Heft der UNIKATE finden. Sicherlich hätte sich auch Ernst Mach von solchen Bildern begeistern lassen und seine

Vorbehalte gegen die Atomvorstellung fallen lassen.

Schnellebige atomare Welt

Die Naturwissenschaften versuchen, die Erscheinungen der makroskopischen materiellen Welt auf atomare beziehungsweise molekulare Vorgänge zurückzuführen. Zum Beispiel deuten wir das Schmelzen von Eis oder das Gefrieren von Wasser als Änderungen der räumlichen Anordnung der Wassermoleküle. Ähnlich verhält es sich mit chemischen Reaktionen, wenn beispielsweise aus den Stoffen A und B eine neue chemische Verbindung AB entsteht. Auf der atomaren Ebene betrachtet, bildet sich dabei eine neue Anordnung der einzelnen Atome (oder Moleküle), bei der

Typ A und Typ B fest aneinander gebunden sind. Die genaue Kenntnis des Ablaufs solcher atomarer Strukturänderungen kann den Schlüssel liefern zu einem fundamentalen Verständnis sehr vieler Erscheinungen und zur Beantwortung der damit verknüpften wissenschaftlichen Fragen. Es liegt daher auf der Hand, dass ein sehr großes Interesse an der Beobachtung des zeitlichen Ablaufs von Änderungen der atomaren Struktur besteht.

Hier kommt ein wichtiger Gesichtspunkt ins Spiel, nämlich die charakteristische Zeitspanne, in der atomare beziehungsweise molekulare Vorgänge ablaufen. Um beim obigen Beispiel zu bleiben, in der makroskopischen Welt kann es einige Tage dauern, bis die Oberfläche eines zugefrorenen Sees in der Frühlings-

sonne auftaut. Aber die zugrunde liegenden elementaren Vorgänge auf molekularer Ebene gehen natürlich sehr viel rascher. Wie schnell kann ein Umbau der atomaren räumlichen Anordnung erfolgen? Man kann eine grobe Abschätzung machen und findet, dass dafür Zeitspannen im Bereich von etwa 10^{-13} Sekunden erforderlich sind. Das sind 100 Femtosekunden. Um den Verlauf atomarer Strukturänderungen zu verfolgen, müsste man daher Bilder von Atomen mit solch kurzen Belichtungszeiten aufnehmen können.

Die Bewegung sehr schneller Objekte kann man im Prinzip mit Hilfe eines mit einem Blitzlichtgerät ausgerüsteten Fotoapparats festhalten. Der beleuchtende Blitz muss sehr kurz sein, damit unsere Objekte gewissermaßen in ihrer Bewegung erstarrt erscheinen (Abb. 3). Aus einer Folge solcher Bilder kann der gesamte uns interessierende Vorgang in Zeitlupe dargestellt werden.

Ist es möglich, Verfahren wie Blitzlichtphotographie beziehungsweise Zeitlupen-Kinematographie auf die für die für atomare Prozesse charakteristischen Zeitspannen zu übertragen, also auf den Femtose-

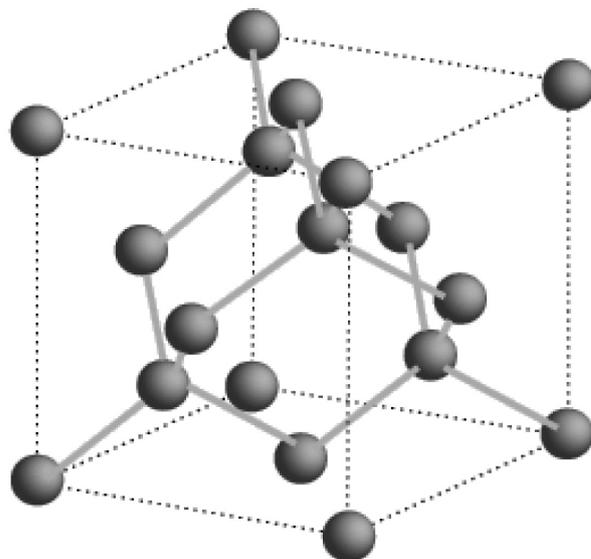
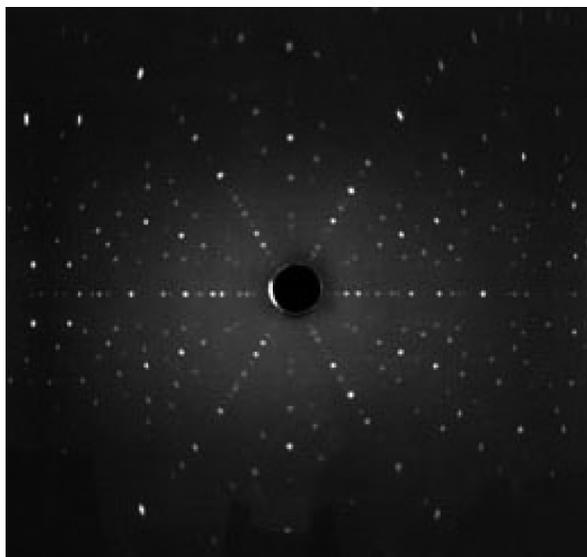
kunden-Bereich? Die Lasertechnik eröffnet in der Tat solche Möglichkeiten. Seit Anfang der siebziger Jahre sind Laser entwickelt worden, mit denen extrem kurze Laserblitze erzeugt werden können. Beim heutigen Stand der Technik ist es möglich Laserimpulse herzustellen, die nur einige Femtosekunden dauern. Derartige Laserimpulse bilden die Grundlage einer interdisziplinären wissenschaftlichen Disziplin, der Ultrakurzzeit-Spektroskopie oder Femtosekunden-Spektroskopie. In der Chemie hat sich die Femtosekunden-Spektroskopie als besonders fruchtbar erwiesen. Der Nobelpreis für Chemie des Jahres 1999 wurde an Ahmed Zewail verliehen, und zwar „weil er nachgewiesen hat, dass man mit Hilfe schneller Laser-Technik sehen kann, wie sich Atome während einer chemischen Reaktion in einem Molekül bewegen“, wie es in der deutschsprachigen Version der Pressemitteilung der Schwedischen Akademie der Wissenschaften damals hieß.

Die Wellenlänge des Laserlichts, das Zewail und seine Mitarbeiter seinerzeit bei den durch den Nobelpreis ausgezeichneten Arbeiten verwendet

hatte, war sehr groß im Vergleich zur Größe von Atomen und Molekülen. Obwohl schon damals die zeitliche Auflösung ausgereicht hätte, atomare Bewegungen aufzulösen, konnte man dennoch die Atome nicht wirklich selber sehen. Tatsächlich wurden die Auswirkungen der atomaren Bewegung auf bestimmte Eigenschaften der Moleküle beobachtet. Zum Beispiel ändert sich die Lichtabsorption in Abhängigkeit von der atomaren Konfiguration eines Moleküls, und daher kann aus Messungen der Absorption indirekt auf die atomare Bewegung geschlossen werden.

Sehr kurze Röntgenblitze

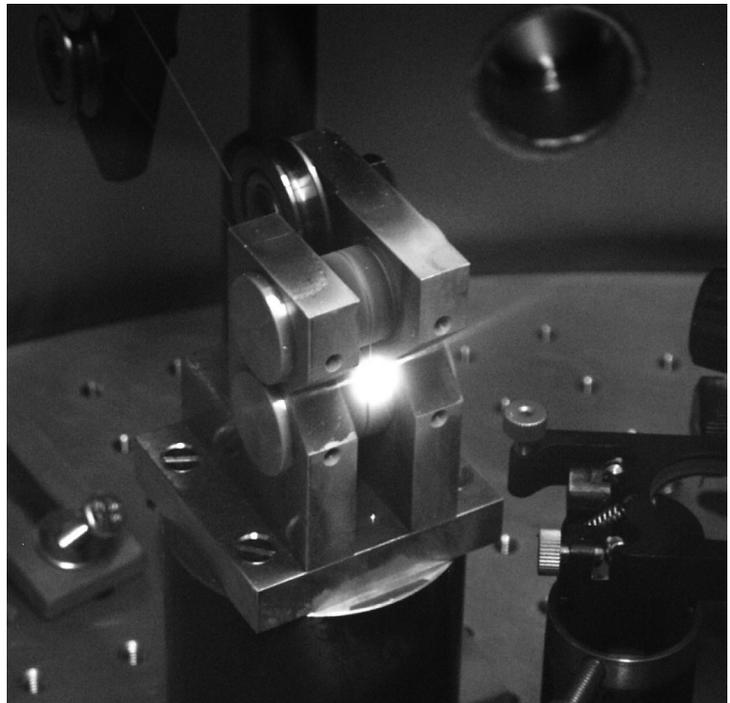
Um Atome auch räumlich aufzulösen, muss man Strahlung verwenden, deren Wellenlänge im Vergleich zu atomaren Dimensionen deutlich kleiner ist, zum Beispiel Röntgenstrahlung. Der Leser erinnere sich an die eingangs erwähnte Entdeckung Max von Laues. Will man atomare räumliche *und* zeitliche Auflösung kombinieren, so wird extrem kurzzeitige Röntgenstrahlung benötigt, nämlich Femtosekunden-Röntgenblitze. Damit hätte man Aussichten,



(2) Links sieht man ein von Röntgenstrahlung an einem Silizium-Kristall erzeugtes Beugungsmuster. Rechts ist die Kristallstruktur von Silizium dargestellt. Das Grundmuster ist ein Kubus. Jedes Silizium-Atom ist in einer tetraedrischen Anordnung von vier Nachbarn umgeben.



(3) Schnappschuss einer Szene, bei der gerade ein Tropfen in eine Wasseroberfläche eingeschlagen ist.



(4) Bild einer Laser-Röntgenquelle. Der im Bild nicht sichtbare Laserstrahl wird auf einen bewegten metallischen Draht fokussiert. Der helle Fleck in der Mitte stammt von dem erzeugten Plasma. Links oben kann man die Drahtzuführung erkennen. Der Laser erzeugt zehn Impulse pro Sekunde. Nach jedem Laserimpuls muss der Draht weiter transportiert werden.

die Vision von Zeitlupen-Aufnahmen atomarer Vorgänge tatsächlich zu verwirklichen.

Eine der Möglichkeiten, solche Femtosekunden-Röntgenblitze zu erzeugen, bietet wiederum die Lasertechnik. Sie ermöglicht es, nicht nur sehr kurze, sondern gleichzeitig auch äußerst intensive Laserimpulse herzustellen. So kann man heute mit relativ geringem Aufwand Laserimpulse herstellen, deren Spitzenleistung die Gesamtleistung sämtlicher Kraftwerke auf der Erde übertrifft, allerdings nur für sehr, sehr kurze Zeit, nämlich nur für Femtosekunden. Die im Fachbereich Physik in Essen entwickelte Anlage erreicht beispielsweise eine Leistung von ungefähr vier Terawatt (Tera bedeutet 10^{12} , von griech. τέρας, Ungeheuer).

Wenn ein derartig intensiver Laserimpuls auf irgendein Material einwirkt, so werden die Atome durch das intensive Laserlicht

gleichsam auseinander gerissen. Aus der Elektronenhülle, welche den Atomkern umgibt, wird ein Teil der Elektronen abgetrennt, so dass das Material in ein Plasma aus Elektronen und Ionen verwandelt wird. Da das starke elektromagnetische Feld des Laserimpulses die elektrisch geladenen Teilchen heftig beschleunigt, erreichen die Teilchen, besonders die leichten Elektronen, hohe Geschwindigkeiten. Diesen Geschwindigkeiten entspricht eine extrem hohe Temperatur des Plasmas, nämlich viele Millionen Grad. Es herrschen Temperatur und Druckverhältnisse, wie sie im Innern von Sternen vorkommen können. Dieser Zustand existiert allerdings nur während einer sehr kurzen Zeit, denn das Plasma expandiert explosionsartig und kühlt sich dabei sehr schnell ab. Während dieser kurzlebigen, heißen Phase des Plasmas wird nun ein entsprechend kurzer Röntgenblitz

ausgestrahlt. Wie sich gezeigt hat, kann ein solches durch Laserimpulse erzeugtes Plasma tatsächlich die Rolle eines „Blitzlichts“ für atomare Momentaufnahmen übernehmen.

Wenn hier ein Vergleich mit dem Innern von Sternen angestellt und von Explosionen geredet wird, so könnte der Eindruck entstehen, bei der Erzeugung dieser Röntgenimpulse handele es sich um ein spektakuläres, zerstörerisches Phänomen. Das ist aber gar nicht der Fall. Denn zum einen spielen sich die beschriebenen Vorgänge in unvorstellbar kurzer Zeit ab, und zum anderen ist das durch den Laser erzeugte Plasma ein *Mikroplasma*, das heißt es ist winzig klein.

Zur Erzeugung des Plasmas wird der Laserstrahl mit Hilfe einer Linse oder eines Hohlspiegels auf einer Metalloberfläche fokussiert. Der Brennfleck auf der Oberfläche hat einen Durchmesser von nur

einigen μm ($1 \mu\text{m}$ entspricht $1/1000$ Millimeter), so dass der Durchmesser des entstehenden Plasmas entsprechend klein ist. Außerdem bildet das Mikroplasma eine dünne Oberflächenschicht, deren Dicke etwa 10 bis 20 nm beträgt (ein Nanometer entspricht $1/1\,000\,000$ Millimeter). Die in ein Plasma umgewandelte Materialmenge ist daher sehr gering, und dem entsprechend harmlos sind die „Explosionen“.

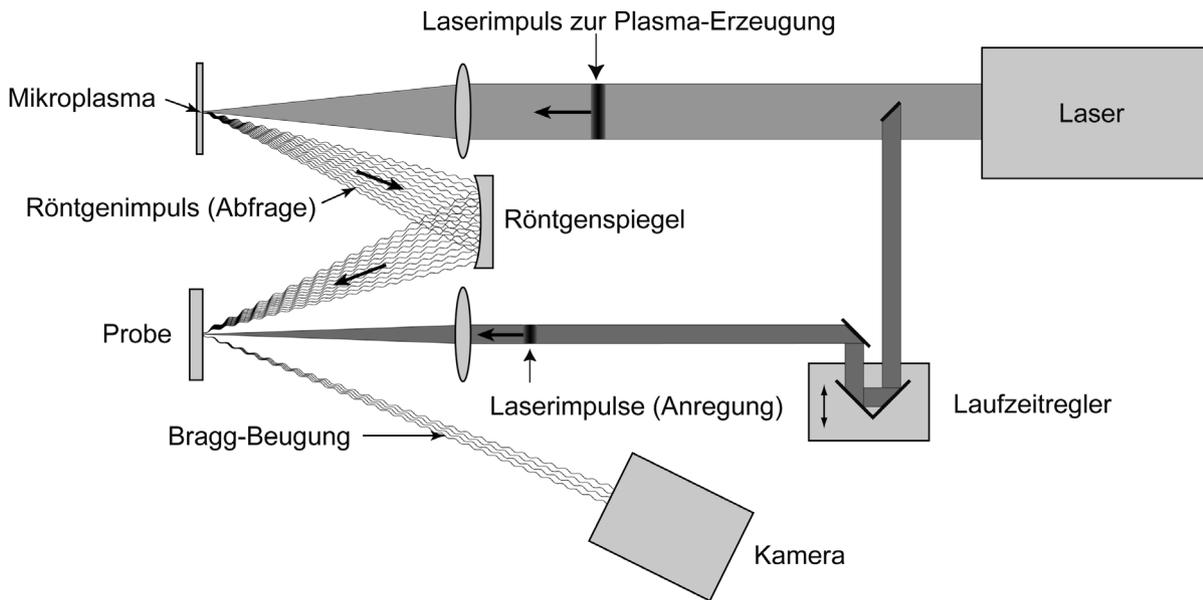
Die Abbildung (4) zeigt, wie eine solche Quelle für Femtosekunden-Röntgenimpulse tatsächlich aussieht. Man sieht im Zentrum des Bildes einen hellen Fleck. Dabei handelt es sich um das Leuchten des Plasmas, das durch einen von rechts unten einfallenden (im Bild nicht erkennbaren) Laserstrahl erzeugt wird. Der Laser wird auf einen metallischen Draht fokussiert. Tatsächlich hat das lasererzeugte Mikroplasma für den Beobachter gewisse Ähnlichkeit mit einem elektrischen Funken, beispielsweise dem Funken einer Zündkerze.

Kino in Zeitlupe

Wie kann man sich nun das „Röntgenblitzlicht“ zu Nutze machen, um Momentbilder atomarer Strukturen aufzunehmen? Von besonderem Interesse sind Momentbilder, welche die verschiedenen Etappen der zeitlichen Entwicklung von atomaren Strukturumwandlungen festhalten, beispielsweise die einer chemischen Reaktion, oder die einer Phasenumwandlung wie das Schmelzen eines Materials, um bei den vorher genannten Beispielen zu bleiben. Derartige Umwandlungen können dadurch ausgelöst werden, dass dem System in bestimmter Weise Energie zugeführt wird. Denken wir an die Strahlen der Sonne, welche das Eis zum Schmelzen bringen.

Zur Beobachtung sehr schnell verlaufender atomarer Umwandlungen können wir folgendermaßen vorgehen. Man löst die interessierende Reaktion durch Energiezufuhr mit Hilfe eines sehr

kurzen Laserimpulses aus. Will man beispielsweise das Schmelzen eines Materials studieren, so kann der Laser dazu verwendet werden, das Material sehr schnell aufzuheizen oder – allgemeiner gesprochen – anzuregen. Die einsetzende Strukturumwandlung vom festen in den flüssigen Zustand kann nun mittels eines stroboskopischen Verfahrens verfolgt werden, zu dem wir das Röntgenblitzlicht verwenden. Nach dem Auslösen der Umwandlung lässt man eine gewisse Zeit verstreichen, bevor die „Szene“ mit dem Röntgenblitz beleuchtet und der momentane Zustand des Systems festgehalten wird. Dann wiederholt man das Experiment und variiert dabei das Zeitintervall zwischen der Laseranregung und der Abfrage des Zustands mit dem Röntgenblitz, und zwar solange, bis der gesamte Vorgang in Zeitlupe festgehalten ist. Man nennt die beschriebene Methode „Anrege-Abfrage-Verfahren“ (englisch: „excite-and-probe“ oder „pump-probe“).



(5) Schema eines Anrege-Abfrage-Experiments. Der Hauptteil des Laserstrahls wird zur Erzeugung des Mikroplasmas verwendet. Der kleinere Anteil dient zur Anregung der Probe. Die Laufzeit der Impulse wird mit Hilfe mechanisch verschiebbarer Spiegel eingestellt. Die Röntgenstrahlung aus dem Plasma wird mittels eines speziellen Spiegels auf die Probe fokussiert. Eine elektronische Kamera detektiert die an der Probe gebeugte Röntgenstrahlung.

Eine offensichtliche Voraussetzung des Verfahrens ist die Bedingung, dass die zur Abfrage verwendete Belichtungszeit, das heißt die Dauer des Röntgenblitzes, kurz genug ist. Sie muss deutlich kürzer sein als der Vorgang selbst. Wie bei der gewöhnlichen Blitzlicht-Photographie, darf sich die Szene während der Aufnahme nicht merklich verändern, da man sonst ein verwaschenes Bild erhält. Die Zeitauflösung des

mas. Die dort entstehende Röntgenstrahlung wird in alle Raumrichtungen ausgesendet. Mit Hilfe eines speziellen Spiegels für Röntgenlicht wird ein Teil davon aufgefangen und beleuchtet als abfragender Röntgenimpuls die zu untersuchende Probe.

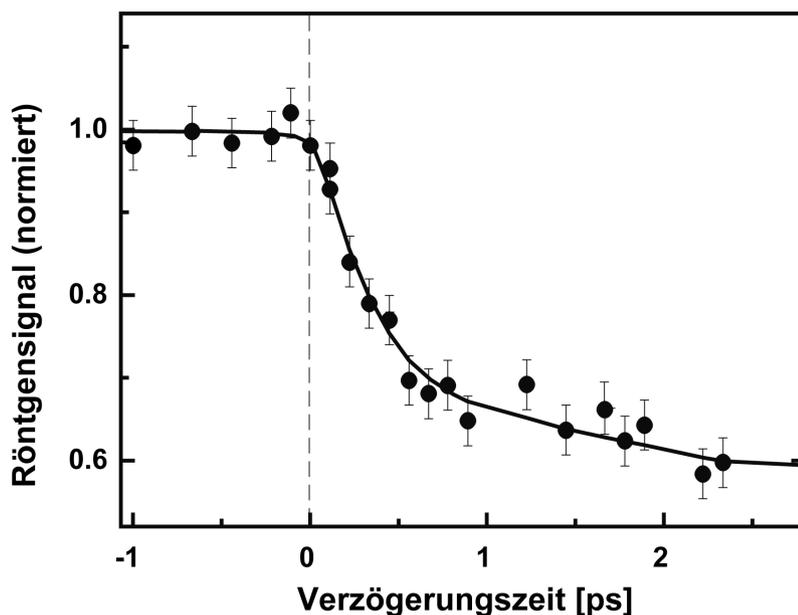
Zur Anregung der Probe, das heißt zur Auslösung des interessierenden Vorgangs, dient der zweite Teil des Laserstrahls. Wie die Abbildung zeigt, wird dieser Teilstrahl

und des Abfrage-Impulses erreicht. Soll beispielsweise der Abfrage-Impuls 100 fs nach dem Anrege-Impuls auf der Probe eintreffen, so ist eine Vergrößerung seines Laufwegs um nur 30 μm erforderlich. Das ist nämlich gerade die Strecke, die Licht in 100 fs zurücklegt. Eine entsprechende Verschiebung der Spiegel der Umwegstrecke ist sehr leicht zu bewerkstelligen.

Atome durcheinander bringen

Das Anrege-Abfrage-Verfahren ist eine sehr allgemeine Methode, mit der extrem schnell verlaufende Prozesse verschiedenster Art untersucht werden können. Das in Abbildung (5) gezeigte Schema ist schon etwas spezialisiert und bezieht sich auf ein bestimmtes Experiment, von dem jetzt die Rede sein wird. Die zu untersuchende Probe ist eine dünne Halbleiterschicht, deren kristalline Struktur durch die Bestrahlung mit einem Laserimpuls zerstört werden kann. Wenn der Röntgenimpuls *vor* dem Laserimpuls eintrifft, so findet er ein intaktes Kristallgitter vor, das heißt eine regelmäßige räumliche Anordnung der Kristallatome. Die Röntgenstrahlung wird an dem Kristallgitter gebeugt, und es entsteht ein für die Kristallstruktur der Probe charakteristisches Beugungsmuster, ähnlich wie das in Abbildung (2) gezeigte Beispiel eines Silizium-Kristalls. Heute verwendet man zum Aufzeichnen derartiger Beugungsmuster in der Regel nicht mehr Photoplaten oder Filme wie in Abbildung (2), sondern eine elektronische Kamera.

Was geschieht nun in dem Experiment, wenn der Laserimpuls eintrifft? Der verwendete Halbleiter, Germanium, absorbiert das Laserlicht sehr stark, und zwar so, dass die gesamte Energie des Laserimpulses in einer dünnen Oberflächenschicht deponiert wird. Dabei werden die Elektronen des Materials, welche die chemische Bindung der Atome bewirken, in höhere Energiezustände befördert. Je mehr Elektronen auf



(6) Gemessene Intensität der an dem Germanium-Kristall gebeugten Röntgenstrahlung in Abhängigkeit von der Zeitdifferenz zwischen Laser- und den Röntgenimpulsen. Das Abklingen der Röntgenbeugung zeigt den Zerfall der kristallinen Ordnung der Germanium-Probe an und den Übergang in den flüssigen Zustand.

Anrege-Abfrage-Verfahrens wird also in erster Linie durch die Dauer des Abfrage-Impulses bestimmt.

Das Schema in Abbildung (5) zeigt, wie das Anrege-Abfrage-Verfahren in die Tat umgesetzt wird. Die für das Experiment benötigten Laserimpulse werden von einer geeigneten Laseranlage geliefert. Zunächst wird der Laserstrahl mittels eines teildurchlässigen Spiegels aufgeteilt. Der eine Teil wird auf eine Metalloberfläche fokussiert und dient zur Erzeugung des Mikroplas-

über eine aus verschiedenen Spiegeln gebildete Umwegstrecke geführt. Durch Änderung des Abstands dieser Spiegel kann die Laufzeit des Anrege-Impulses verändert und damit der Zeitpunkt seines Eintreffens auf der Probe verändert werden.

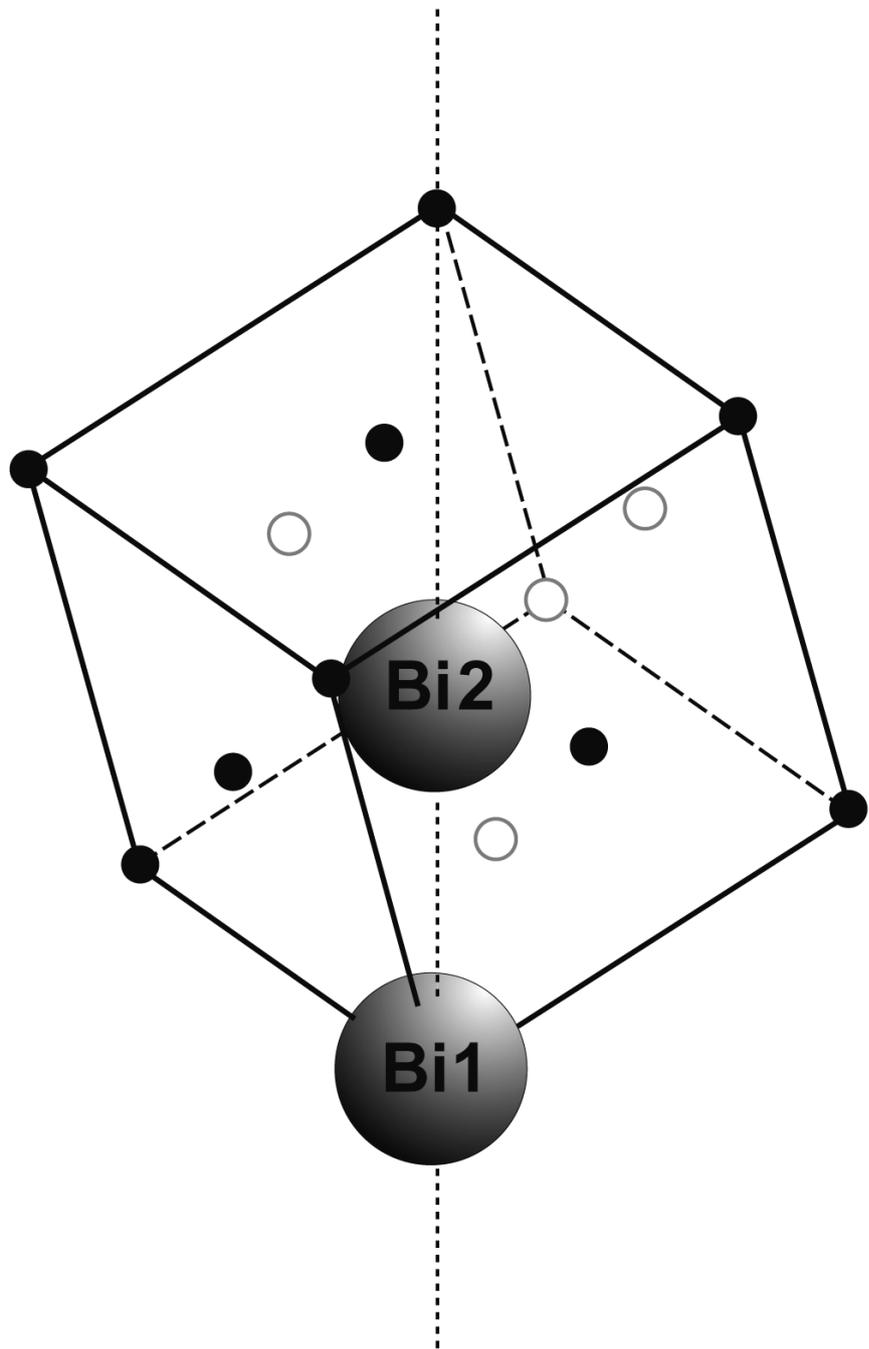
Damit stoßen wir auf einen wichtigen Punkt des Anrege-Abfrage-Verfahrens. Die erforderliche zeitliche Präzision des Experiments wird durch die mechanische Kontrolle der Laufwege des Anrege-

diese Weise angeregt werden, um so mehr werden die chemischen Bindungskräfte geschwächt. Mit einem entsprechend intensiven, kurzen Laserimpuls kann man die Bindungskräfte praktisch ausschalten. Dann können die Atome aber nicht mehr auf ihren Plätzen im Kristallgitter gehalten werden. Sie beginnen, sich in ungeordneter Weise zu bewegen, so dass die kristalline Ordnung in kurzer Zeit verloren geht. Das Beugungsmuster, welches den geordneten kristallinen Zustand anzeigte, verschwindet dann ebenfalls. Am Ende befinden sich die Atome in einem räumlich ungeordneten Zustand, nämlich in einem flüssigen Zustand.

Diese Umwandlung vom kristallinen in einen flüssigen Zustand kann man Schritt für Schritt verfolgen, wenn mit Röntgenimpulsen, die gegenüber dem Laserimpuls entsprechend verzögert worden sind, der momentane Zustand des Systems erfasst wird.

Für die Beobachtung des Übergangs vom geordneten in den ungeordneten Zustand genügt es zunächst, nur einen bestimmten Röntgenreflex zu erfassen, und nicht das gesamte Beugungsmuster. Letzteres kann für Materialien mit komplexer Struktur erheblich komplizierter sein als das einfache Muster des Silizium-Kristalls in Abbildung (2). Allerdings gewinnt man um so mehr detaillierte Strukturinformation, je vollständiger das Beugungsmuster erfasst wird.

In dem angesprochenen Germanium-Experiment wird also mit der elektronischen Kamera die Stärke eines bestimmten Röntgenreflexes in Abhängigkeit von der Zeit gemessen, genauer in Abhängigkeit von der Zeit, die seit der Laseranregung verstrichen ist. Das Ergebnis einer solchen Messung ist in Abbildung (6) dargestellt. Der Zeit-Nullpunkt entspricht der Ankunftszeit des anregenden Laserimpulses. Man sieht, dass sich die Beugungsintensität zunächst nicht ändert. Danach wird eine sehr rasche Abnahme der Stärke



(7) Die Struktureinheit eines Wismut-Kristalls ist ein Kubus, der entlang einer Diagonalen (punktirierte Linie) etwas gestreckt ist. An den Ecken und in den Seitenmitten des Kubus (gefüllte und offene Kreise, vorne beziehungsweise hinten) sitzt jeweils ein Paar von Wismut-Atomen (chemisches Symbol: Bi). Die Abbildung zeigt nur ein einziges solches Paar. Die Wismut-Atome werden durch den Laserimpuls zu Schwingungen entlang der Diagonalen angeregt.

des Röntgenreflexes beobachtet. Auf die Einzelheiten des zeitlichen Verlaufs kommt es hier nicht an. Wichtig ist, dass die Beugungsintensität innerhalb von etwa 500 fs sehr stark abfällt. Dieses Ergebnis suggeriert, dass sich die atomare Unordnung innerhalb von einigen 100 fs einstellt und der Übergang in den flüssigen Zustand also in dieser kurzen Zeit stattfindet. Da es wesentlich länger dauert, die Energie des Laserimpulses im Kristall so zu verteilen, dass man von Temperatur reden kann, spricht man hier von *nicht-thermischem Schmelzen*, im Gegensatz zu dem wesentlich langsamerem („normalen“) thermischen Schmelzen, bei dem sich das Temperaturgleichgewicht schon eingestellt hat.

Bei dem hier geschilderten Experiment, das im Jahre 2000 in Essen durchgeführt wurde², war man noch recht weit davon entfernt, detaillierte Momentaufnahmen von atomaren Strukturen zu gewinnen. Jedoch war es weltweit eines der ersten Experimente dieser Art, mit dem die Femtosekunden-Zeitauflösung in die Röntgenphysik eingeführt wurde und das zukünftige Potenzial dieser Methode demonstriert werden konnte.

Die Untersuchungen des nicht-thermischen Schmelzens sind mittlerweile ganz erheblich verfeinert worden, wobei bemerkenswerte Entwicklungen auf dem Gebiet der Erzeugung von kurzzeitiger Röntgenstrahlung eine entscheidende Rolle spielen³. Die faszinierende Vision, eines Tages tatsächlich atomare und molekulare Zustände gewissermaßen in Schnappschüssen festhalten zu können, hat international erhebliche Anstrengungen entfacht, leistungsstarke, extrem kurzzeitige Röntgenquellen zu entwickeln. Dabei handelt es sich um große Anlagen und Großprojekte, die den Rahmen der Möglichkeiten einer durchschnittlichen Universität sprengen. Es werden nämlich große Elektronen-Beschleuniger benötigt, wie zum Beispiel der Beschleuniger des Stanford Linear Acceleration

Center (SLAC) der Stanford University, oder der hochmoderne Elektronenbeschleuniger, der gerade bei DESY in Hamburg gebaut wird.

Doch bevor auf diese spannenden Möglichkeiten noch etwas näher eingegangen wird, wollen wir uns mit einem weiteren Beispiel befassen, das zeigt, was auch in kleinerem Rahmen mit Laser-Röntgenquellen geleistet werden kann.

Geordnetes Miteinander

Bei der Untersuchung von Schmelzvorgängen hat man es mit ziemlich drastischen Änderungen der atomaren Struktur zu tun, nämlich dem Verlust der strengen räumlichen Ordnung der Atome und dem Übergang zu einem völlig ungeordneten Zustand. Bei diesem Vorgang entfernen sich die Atome ziemlich weit von ihren ursprünglichen Plätzen. Natürlich gibt es auch noch viele andere, interessante Prozesse, die mit weit weniger Bewegung der Atome verbunden sind. Beispielsweise können in Kristallen Schallwellen angeregt werden, sowie andere Formen von atomaren Schwingungen, die in der Physik von großem Interesse sind. Bei diesen Prozessen entfernen sich die Atome nur wenig von ihren Gleichgewichtspositionen. Kann man auch derartige, subtilere Veränderungen beobachten?

Dass das mit einfachen Mitteln möglich ist, zeigten wir in einem Experiment mit dem Material Wismut⁴. Auch hier machten wir uns zu Nutze, dass durch Anregung mit einem kurzen Laserimpuls die atomaren Bindungen praktisch momentan verändert werden können. Jetzt wird aber einen relativ schwachen Laserimpuls verwendet, so dass die Atome gewissermaßen nur einen kleinen Stoß bekommen, nicht so stark, dass dadurch die Kristallstruktur zerstört wird wie im Falle des laserinduzierten Schmelzens. Sie werden zu Schwingungen angestoßen, und zwar so, dass alle Atome im Takt, das heißt *kohärent*, schwingen,

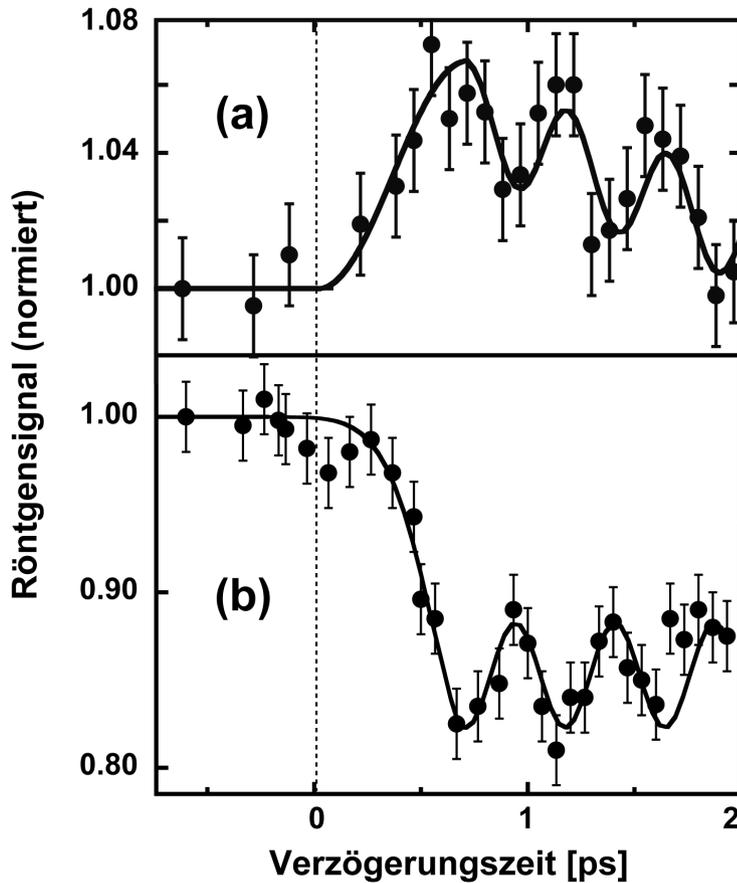
und nicht etwa wie bei der normalen Temperaturbewegung völlig ungeordnet.

Seit langem gab es indirekte Hinweise, dass in Wismutkristallen mit Hilfe von Laserimpulsen eine besonders einfache Art von kohärenten atomaren Schwingungen angeregt werden kann. Aber man braucht Röntgenblitze, die deutlich kürzer sind als die atomare Schwingungsperiode, um die mit diesen Schwingungen verbundenen atomaren Bewegungen direkt sichtbar zu machen.

Der Typ von atomarer Bewegung in Wismut, für den wir uns hier interessieren, soll noch etwas näher verdeutlicht werden. Ein Wismut-Kristall besteht aus einer räumlich-periodischen Anordnung relativ einfacher Blöcke. Wie Abbildung (7) zeigt, ist das Grundgerüst eines solchen Blocks praktisch ein Kubus. An jeder Ecke des Kubus und zusätzlich noch in den Seitenmitten sitzt ein Pärchen von Wismut-Atomen. Damit die Darstellung nicht zu unübersichtlich wird, ist in Abbildung (7) nur eines dieser Wismut-Paare gezeigt.

Wenn man genauer hinschaut, ist der Kubus entlang einer Diagonale etwas gestreckt, und die von den Wismut-Paaren definierte Achse verläuft parallel zu dieser Diagonale. Durch die Laseranregung wird nun das Kräftegleichgewicht zwischen den beiden Wismut-Atomen plötzlich verändert, so dass diese anfangen, gegeneinander zu schwingen. Der gleiche Vorgang findet in genau derselben Weise in allen Blöcken statt. Das sind die kohärenten atomaren Schwingungen des Kristalls, deren Verlauf gemessen werden soll.

Das Experiment wird in ganz ähnlicher Weise durchgeführt wie im Beispiel des Schmelzexperimentes. Man misst die Beugungsintensität bestimmter Röntgenreflexe des Wismutkristalls in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung zwischen Röntgen- und Laserimpuls. Da die Struktur von Wismut genau bekannt ist, kann man sich überlegen, welche



(8) Gemessene Intensität der an dem Wismut-Kristall gebeugten Röntgenstrahlung für zwei verschiedene Röntgenreflexe in Abhängigkeit von der Zeitdifferenz zwischen Laser- und den Röntgenimpulsen. Zunahme des Signals in (a) und Abnahme in (b) bedeuten eine anfängliche Vergrößerung des Abstands der Wismut-Atome. Klar zu erkennen sind die gegensinnigen Oszillationen der Signale, die die atomaren Schwingungen widerspiegeln.

Röntgenreflexe besonders geeignet sind, die Schwingungen der Wismut-Atome anzuzeigen. Es gibt zwei verschiedene Typen: Reflexe, deren Intensität zunimmt, wenn der Abstand der Wismut-Atome zunimmt, und Reflexe mit umgekehrtem Verhalten. Wenn also die Atome gegeneinander schwingen, sollte eine periodische Zu- und Abnahme für beide Typen zu beobachten sein, allerdings im entgegengesetzten Sinn.

Die in Abbildung (8) dargestellten Messergebnisse zeigen, dass dieses Verhalten tatsächlich beobachtet werden konnte. Dort ist wieder

die gemessene Beugungsintensität in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit dargestellt. Der Nullpunkt bedeutet, dass die anregenden Laserimpulse und die Röntgenimpulse gleichzeitig auf der Wismut-Probe eintreffen. Für das Experiment sind zwei Röntgenreflexe ausgewählt worden, die gegensinniges Verhalten aufweisen sollten.

In Abbildung (8a) sieht man, dass die Beugungsintensität zunächst ansteigt. Eine Zunahme der Intensität bedeutet bei diesem Reflex eine Vergrößerung des Abstands der Wismut-Atome. Das anschließende periodische Auf und Ab des Signals

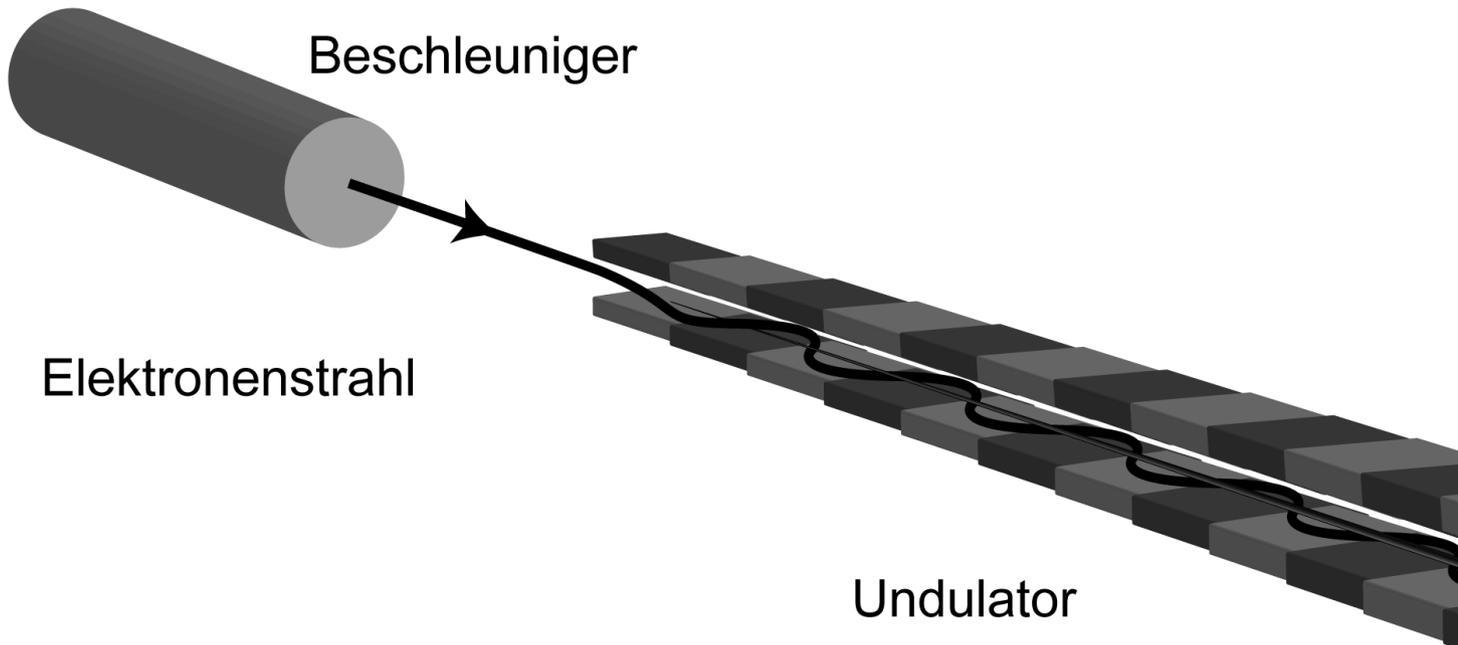
zeigt, dass sich der Abstand der Atome periodisch ändert, das heißt wir beobachten tatsächlich Schwingungen. Die Daten in Abbildung (8b) zeigen sehr schön das im Vergleich zu Abbildung (8a) gegenseitige Verhalten der Oszillationen des Beugungssignals, wie es für diesen Typ von Reflex auch erwartet wird.

Die Daten dieses Experiments liefern unter anderem die Schwingungsdauer der Wismut-Atome, nämlich 450 fs. Das ist auch deshalb sehr interessant, weil es bis heute keine Messverfahren zur Bestimmung der Dauer von sehr kurzen Röntgenimpulsen gibt, und die Impulsdauer in unserem Experiment vorab nicht bekannt war. Da es gelungen ist, die atomaren Schwingungen zeitlich aufzulösen, zeigen die Ergebnisse und deren Analyse, dass die lasererzeugten Röntgenimpulse eine Dauer von etwa 300 fs haben.

Elektronen beschleunigen

Um derartig subtile, durch atomare Schwingungen hervorgerufene Änderungen der Beugungsintensität zu messen, war eine sehr lange Messzeit notwendig, und man bewegt sich an der Grenze der Möglichkeiten der lasergetriebenen Röntgenquellen. Auch hier sind wir immer noch ein ganzes Stück von der Vision detaillierter Momentaufnahmen komplexer Strukturen entfernt, doch hat dieses Experiment vor allem Demonstrationscharakter und zeigt, welches Potenzial die Methode grundsätzlich bietet.

Unser Essener Team hatte Gelegenheit, an der Stanford University an einer Weiterführung dieses Wismut-Experiments mitzuarbeiten⁵. Dort wurde eine neuartige, Kurzzeit-Röntgenquelle eingesetzt, die so genannte Sub-Picosecond Pulse Source (SPPS). Die SPPS verwendet zur Erzeugung von Röntgenstrahlung den 40 GeV Elektronenbeschleuniger von SLAC. Bei den Experimenten in Stanford konnten unter anderem die früheren Essener



(9) Prinzip des Freie-Elektronen-Lasers. Man benötigt zunächst einen Elektronenbeschleuniger zur Erzeugung eines Elektronenstrahls hoher Energie. Dieser Strahl wird durch eine Anordnung von Magneten mit sich periodisch umkehrender Polrichtung geschickt (helle und dunkle Magnete). Das Magnetfeld lenkt die Elektronen ab, so dass deren Bahnen einen wellenförmigen Verlauf annehmen und Röntgenstrahlung erzeugen (so genannte Synchrotron-Strahlung). Für Undulatoren großer Länge kann es zu einem exponentiellen Anwachsen der Röntgenstrahlung kommen, ähnlich wie bei der Lichtverstärkung in einem Laser. Das Ergebnis ist laserartige, hochintensive und extrem kurzzeitige Röntgenstrahlung.

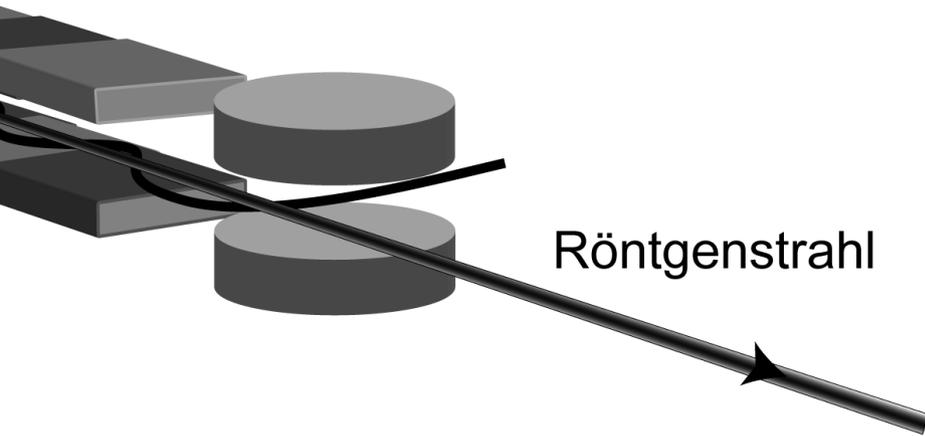
Messresultate sehr schön bestätigt werden. Besonders bemerkenswert ist jedoch, dass aufgrund der enormen Leistungsfähigkeit dieser Quelle die in Essen benötigte Messzeit von ungefähr zehn Stunden auf zwei Minuten reduziert und gleichzeitig die Messgenauigkeit erheblich verbessert werden konnte.

Was für eine Röntgenquelle ist das nun, die solche bedeutende Verbesserungen ermöglicht? Wie schon erwähnt, spielt hier ein Elektronenbeschleuniger eine entscheidende Rolle. Dieser beschleunigt Elektronen so stark, dass sie sich praktisch mit Lichtgeschwindigkeit bewegen. Diese Elektronen senden keine Strahlung aus, solange sie sich ungestört auf einer geraden Bahn bewegen. Wenn sie jedoch von der geraden Bahn abgelenkt werden,

zum Beispiel durch Magnete, wird Strahlung erzeugt. Die Abbildung (9) zeigt, wie man sich dieses Prinzip zu Nutze machen kann. Der mit Hilfe eines Beschleunigers erzeugte Elektronenstrahl wird durch eine Anordnung von Magneten geschickt, bei der sich die magnetischen Nord- und Südpole periodisch abwechseln. Wie die Abbildung andeutet, verwandeln die Magnete gerade Elektronenbahnen in wellenförmige. Man nennt eine solche Anordnung deshalb auch „Undulator“. Wichtig ist, dass die Elektronen auf den Wellenbahnen elektromagnetische Strahlung erzeugen. Wenn die Energie der Elektronen entsprechend hoch ist und wenn Periodenabstand und Stärke der Magnete entsprechend gewählt werden, entsteht Röntgenstrahlung.

Der ursprünglich für die Elementarteilchen-Physik gebaute, etwa drei Kilometer lange Elektronenbeschleuniger bei SLAC musste für die Kurzzeit-Röntgenexperimente etwas modifiziert werden. In erster Linie wurden bestimmte Vorrichtungen eingebaut, die dazu dienen, die beschleunigten Elektronen in sehr kurze Impulse zu konzentrieren. Wenn diese „bunches“ dann durch einen Undulator geschickt werden, erhält man entsprechend kurze Röntgenimpulse.

Der Unterschied dieser Röntgenquelle zu Laser-Röntgenquellen in Essen oder andernorts ist ganz und gar überwältigend. Die SPPS liefert nicht nur extrem kurze Röntgenblitze (Dauer kleiner als 100 fs), sondern auch insgesamt mehr Leistung, das heißt mehr Röntgenlicht.



Darüber hinaus ist die Strahlung in einem wohldefinierten Strahl von etwa zwei Millimeter Durchmesser konzentriert, und nicht über alle Raumrichtungen verteilt, wie bei den Laser-Röntgenquellen.

Allerdings taucht eine neue Schwierigkeit auf. Bei dem Anrege-Abfrage-Verfahren hängt die Zeitauflösung davon ab, dass der Zeitabstand zwischen dem abfragenden Röntgen- und dem anregenden Laserimpuls stabil ist und sehr genau kontrolliert werden kann. Bei der Verwendung von Laser-Röntgenquellen ist diese Synchronisation ganz leicht mit Hilfe einer verstellbaren Laufzeitstrecke erreichbar, wie in Abbildung (5) erläutert worden ist. Doch wie löst man das Problem, wenn die Röntgenimpulse ganz unabhängig von dem Laser mit Hilfe

eines Beschleunigers hergestellt werden?

Tatsächlich gelingt es, mit elektronischen Mitteln den Beschleuniger und den Laser schon so gut zu synchronisieren, dass der Zeitabstand zwischen den Röntgen- und den Laserimpulsen nur um etwa 10^{-12} s schwankt, das heißt um etwa eine Pikosekunde. Das ist tatsächlich kein schlechtes Ergebnis! Dennoch ist man damit nicht zufrieden. Die Zeitauflösung des Verfahrens ist ja letztlich durch die Dauer der abfragenden Röntgenimpulse begrenzt, und die beträgt ungefähr 100 fs, also 10^{-13} s. Also würde man im Prinzip eine zehnfach bessere Zeitauflösung schaffen, wenn die Schwankungen des Zeitabstands deutlich kleiner gemacht werden könnten.

Es ist jedoch gelungen, das Problem auf eine andere Weise zu lösen⁶. Man kann nämlich für jedes Impulspaar (Laser/Röntgen) den jeweiligen Zeitabstand messen und registrieren. Kennt man für jedes Ereignis den Zeitabstand, kann diese Information bei der Datenanalyse berücksichtigt werden. Anstatt also beim Anrege-Abfrage-Verfahren mit Hilfe einer Laufzeitstrecke den Zeitabstand genau einzustellen, überlässt man diesen gewissermaßen dem Zufall, führt aber eine genaue Buchführung durch.

Neue Horizonte

Leider wurde diese weltweit einzigartige Kurzzeit-Röntgenquelle im Jahr 2006 stillgelegt, und damit die sehr erfolgreiche Serie von Experimenten unterbrochen. Der Grund dafür war der Beginn von Bauarbeiten für eine neue Großanlage bei SLAC, nämlich die „Linac Coherent Light Source“ (LCLS). Dabei handelt es sich um einen so genannten Freie-Elektronen-Laser (FEL), für den die SPPS in einiger Hinsicht eine Vorstufe darstellte. Der Undulator der SPPS wird ersetzt durch eine wesentlich größere Anordnung mit einer Länge von ungefähr 100 Metern. Man erreicht damit nicht nur quantitative Verbesserungen (mehr Röntgenstrahlung), sondern es kommen ganz entscheidende qualitative Veränderungen mit ins Spiel. Die zukünftige Anlage wird nämlich *kohärente* Röntgenimpulse liefern, das heißt kurzzeitige, kurzweilige Strahlung, die die Eigenschaften von Laserstrahlung aufweist, wie es auch schon in der Bezeichnung „Freie-Elektronen-Laser“ zum Ausdruck kommt. Das LCLS-Projekt von SLAC steht an der dritten Stelle auf der Liste wissenschaftlicher Großprojekte der Vereinigten Staaten. In Europa wird ebenfalls ein solcher Röntgenlaser gebaut, nämlich der „European XFEL“ bei DESY in Hamburg. Ähnliche Projekte werden auch in anderen

Ländern verfolgt, beispielsweise in Japan.

Kurzpuls-Röntgenlaser stellen eine ideale Lichtquelle dar, mit deren Hilfe man die Vision von Zeitlupe-Aufnahmen atomarer Prozesse in naher Zukunft tatsächlich verwirklichen kann. Darüber hinaus eröffnen diese Anlagen noch viele andere spektakuläre wissenschaftliche Perspektiven. Allerdings wird die Zahl solcher Großanlagen begrenzt bleiben, und nur wenige Wissenschaftler werden Zugang zu einem Röntgenlaser bekommen, um dort Experimente durchzuführen.

Welche anderen Möglichkeiten gibt es, für diese Art von Forschung die Abhängigkeit von Großanlagen zu mildern? Sicherlich wird man auch die lasergetriebenen Kurzpuls-Röntgenquellen in Zukunft verbessern, aber es ist nicht klar, in welchem Umfang diese wissenschaftlich wettbewerbsfähig bleiben werden. Deshalb ist es interessant, andere Formen von Strahlung ins Auge zu fassen und zu fragen, ob diese als „Blitzlicht“ in Frage kommen. Beispielsweise werden Elektronenstrahlen an atomarer Materie ganz ähnlich gebeugt wie Röntgenlicht. Was die Fähigkeit anbelangt, atomare Strukturen aufzulösen, so stehen Röntgen- und Elektronenstrahlung in einem komplementären Verhältnis. Röntgenstrahlung dringt im Allgemeinen tief in das Material ein, ganz anders als Elektronen, die kaum durch die Oberfläche hindurch in das Material eintreten können. Daher sind die Elektronen hervorragend geeignet, Oberflächen zu untersuchen, während das mit Röntgenstrahlung nicht so einfach ist.

Kann man auch Femtosekunden-Elektronenimpulse herstellen? Das erscheint zunächst ganz leicht möglich zu sein. Beispielsweise können durch den lichtelektrischen Effekt aus einer Metalloberfläche Elektronen durch Licht ausgelöst werden. Wenn also eine Oberfläche mit einem kurzen Laserimpuls bestrahlt wird, sollte ein entsprechend kurzer

Elektronenimpuls entstehen. Dazu sind keine aufwendigen Anlagen erforderlich, und eine solche Elektronenquelle passt im Gegensatz zu einem Röntgenlaser in jedes Labor.

Allerdings sind Elektronen elektrisch geladene Teilchen, die einander abstoßen. Je mehr Elektronen in einen kurzen Impuls zusammengedrängt werden, um so heftiger ist die Abstoßung. Die Elektronen streben auseinander, so dass sich ein kurzer Elektronenimpuls rasch wieder verbreitert. Durch technische Kunstgriffe gelingt es allerdings, diese Verbreiterung auf ein Minimum zu reduzieren, so dass man tatsächlich auch Femtosekunden-Elektronenimpulse herstellen kann. Mit deren Hilfe können ähnliche zeitaufgelöste Experimente durchgeführt werden wie mit Röntgenimpulsen. Für die Thematik des Sonderforschungsbereichs ist besonders interessant, dass die Methode der Elektronenbeugung speziell für Untersuchungen an Oberflächen hervorragend geeignet ist. In diesem Zusammenhang sei dem Leser der Artikel von Boris Krenzer empfohlen, der in diesem UNIKATE-Heft ein entsprechendes Projekt vorstellt.

Summary

Changes in the atomic configuration underlying chemical reactions, phase transitions or many other fundamental processes in nature take place on a femtosecond (fs) time scale; that is, roughly speaking 10^{-14} to 10^{-13} s ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$). Although they provide the necessary time resolution, ultrafast lasers and optical spectroscopy lack the spatial resolution that would be required to directly track the motion of the atoms. Recently, ultrashort X-ray pulses with subnanometer wavelength have been developed, enabling a combination of femtosecond time resolution and atomic spatial resolution. Thus the vision of scientists being able to

take snapshots of rapidly changing, complex atomic structures appears to be within reach.

Anmerkungen/Literatur

- 1) 1 Femtosekunde ist der 10^{15} -te Teil einer Sekunde, 10^{-15} s. Femto kommt von skandinavisch „femton“, fünfzehn.
- 2) Klaus Sokolowski-Tinten et al. (2001): Femtosecond X-ray Measurement of Ultrafast Melting and Large Acoustic Transients, In Physical Review Letters 87, 225701.
- 3) Aaron M. Lindenberg et al. (2005): Atomic-Scale Visualization of Inertial Dynamics, In Science 308, 392.
- 4) Klaus Sokolowski-Tinten et al. (2003): Femtosecond X-ray Measurement of Coherent Lattice Vibrations Near the Lindemann Stability Limit, In Nature 422, 287-289.
- 5) David M. Fritz et al. (2007): Ultrafast Bond Softening in Bismuth: Mapping a Solid's Interatomic Potential with X-rays, In Science 315, 633.
- 6) Adrian L. Cavalieri et al. (2005): Clocking Femtosecond X-Rays, In Physical Review Letters 94, 114801.

Der Autor

Dietrich von der Linde studierte Physik in Karlsruhe und München. Er promovierte 1971 an der Technischen Universität München mit einer Arbeit über die Erzeugung und Anwendung extrem kurzer Laserimpulse. Im Jahre 1972 wurde von der Linde „Member of Technical Staff“ bei den Bell Telephone Laboratories in Murray Hill, N. J., USA., wo er unter anderem auf dem Gebiet der optischen Speicher arbeitete. Ab 1976 folgte eine Forschungstätigkeit in der Halbleiterphysik am Max-Planck-Institut für Festkörperforschung in Stuttgart. Im Jahr 1979 nahm er einen Ruf auf eine Professur für Experimentelle Physik an der damaligen Universität Essen an. In der Folgezeit arbeitete Dietrich von der Linde hauptsächlich in der Laser- und Festkörperphysik. Forschungsaufenthalte als Gastprofessor führten ihn unter anderem an die Harvard University, Cambridge, M A, USA, und die École Polytechnique, Palaiseau, Frankreich. In jüngerer Zeit beschäftigte von der Linde sich mit der Erzeugung von extrem kurzen Röntgen- und Elektronenimpulsen und deren Anwendungen für Untersuchungen der Materie mit hoher zeitlicher und atomarer räumlicher Auflösung. Seit 2003 ist er Mitglied des Scientific Advisory Committee beim Stanford Linear Accelerator Center (SLAC) für das Röntgen-Laser-Projekt LCLS (Linac Coherent Light Source) der Stanford University. In den Jahren 2001 bis 2004 war Dietrich von der Linde als Dekan des Fachbereichs Physik mit der Verlagerung der Essener Physik auf den Campus Duisburg und die Fusion mit dem dortigen Fachbereich befasst.

DuEPublico

Duisburg-Essen Publications online

UNIVERSITÄT
DUISBURG
ESSEN

Offen im Denken

ub | universitäts
bibliothek

Dieser Text wird über DuEPublico, dem Dokumenten- und Publikationsserver der Universität Duisburg-Essen, zur Verfügung gestellt. Die hier veröffentlichte Version der E-Publikation kann von einer eventuell ebenfalls veröffentlichten Verlagsversion abweichen.

DOI: 10.17185/duepublico/73806

URN: urn:nbn:de:hbz:464-20210203-162736-1

Alle Rechte vorbehalten.