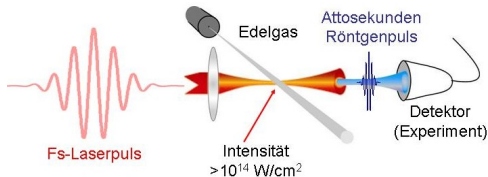
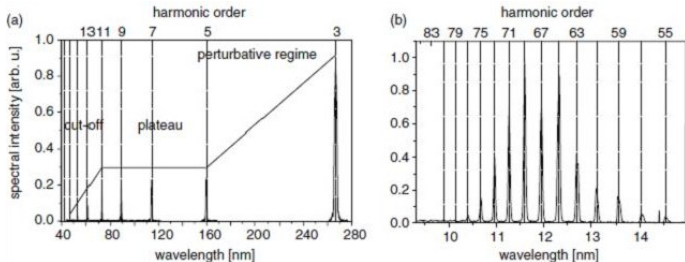


# Erzeugung Hoher Harmonischer (HHG) und as X-rays

- Informationen und Material: Rev. Mod. Phys. 81, 163 (2009)



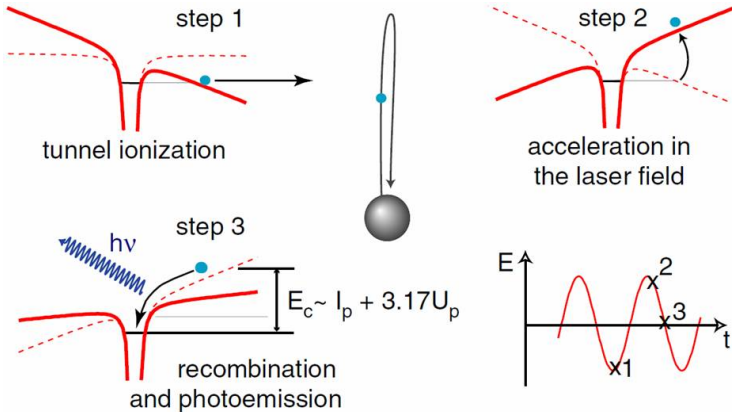
Quelle: T. Pfeifer, MPI-Kernphysik, Heidelberg



# Erzeugung Hoher Harmonischer (HHG) und as X-rays

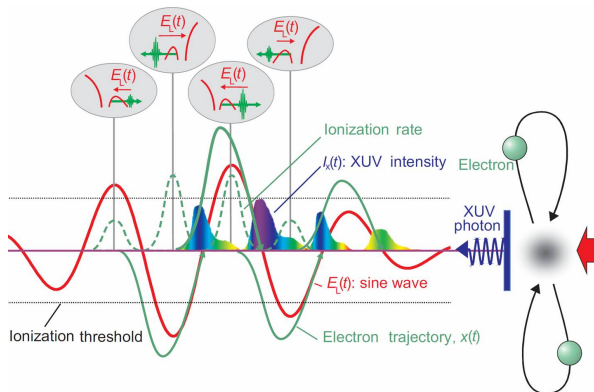
## • Beschreibung im 3-Stufen Modell der Elektronen-Rückstreuung

Theorie: P. Corkum 1993; K. Kulander 1993 / Experiment: McPherson et al. 1987; Ferray, LHuillier et al. 1987



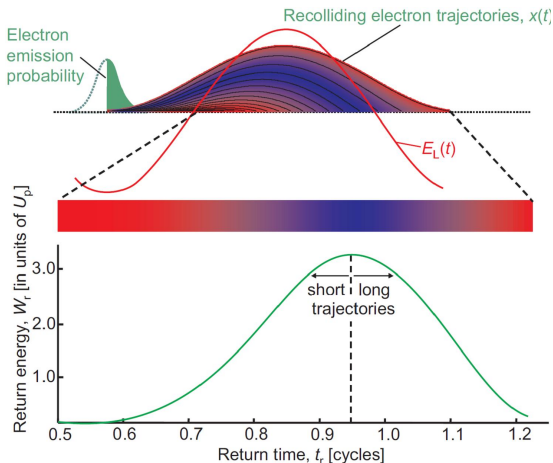
Rep. Prog. Phys. 69, 443 (2006)

## Erzeugung Hoher Harmonischer (HHG) und as X-rays



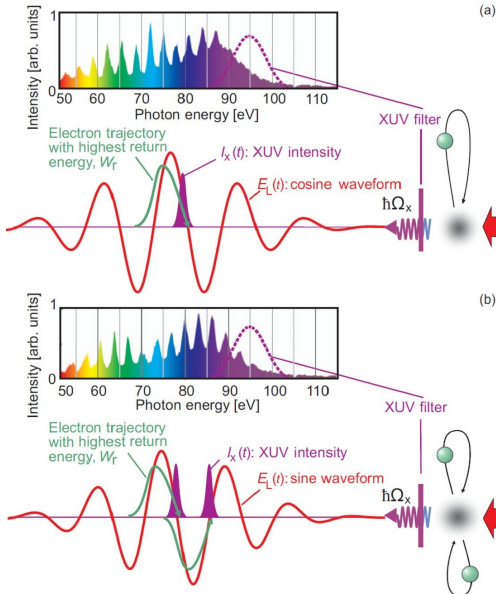
- Zeitlich periodische HHG-Emission (as-Pulsfolge) führt zu charakteristischem HHG-Spektrum (siehe Fourier-Transformation)
- Unterschiedliche Harmonische werden zu unterschiedlichen Zeiten erzeugt (HHG-Kamm zeigt "chirp")

## Erzeugung Hoher Harmonischer (HHG) und as X-rays



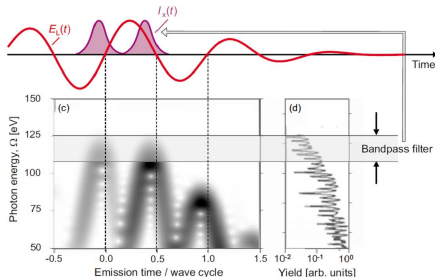
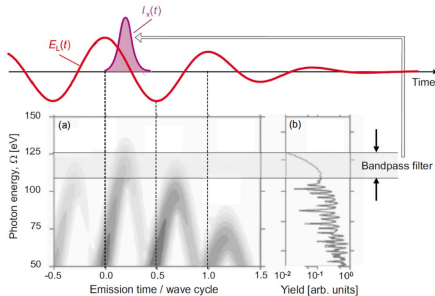
- Unterschiedliche Trajektorien innerhalb einer Periode führen zu unterschiedlichen Photonenenergien (as-Puls zeigt "chirp")

## Erzeugung Hoher Harmonischer (HHG) und as X-rays



- Frage:  
Wie erzeugt man einzelne as-Röntgenpulse ?
- Antwort:  
Kombination von Bandpassfilter und optischem Laserpuls weniger Zyklen mit stabiler Phase zwischen Trägerfrequenz und Einhüllender !

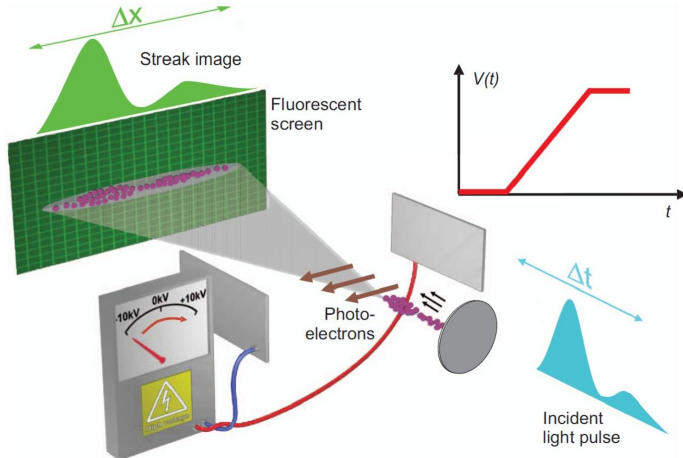
# Erzeugung Hoher Harmonischer (HHG) und as X-rays



- Frage:  
Wie erzeugt man einzelne as-Röntgenpulse ?
- Antwort:  
Kombination von Bandpassfilter und optischem Laserpuls weniger Zyklen mit stabiler Phase zwischen Trägerfrequenz und Einhüllender !

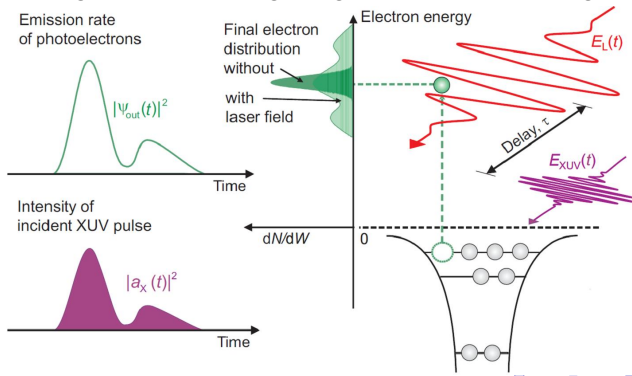
# Zeitdiagnose von as-Röntgenpulse

- Auflösung von Mikrowellen getriebenen Schlierenkameras  $\approx 1$  ps
- Abbildung einer Zeitinformation in eine Ortsinformation
- Viel zu langsam für Attosekunden-Metrologie !



# Zeitdiagnose von as-Röntgenpulsen

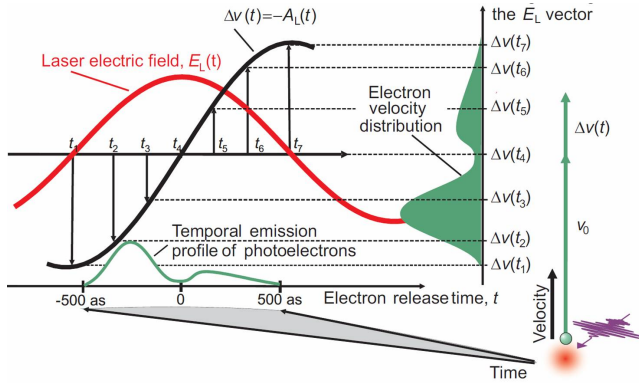
- Lösung: Lichtwellen getriebene Schlierenkamera
- Abbildung einer Zeitinformation in kinetische Energie der Photoelektronen
- Auflösung:  $\Delta t \propto 1/\sqrt{\omega_L \cdot W} \approx \text{as}$   
mit  $W :=$  Energieverschiebung aufgrund des "streaking"-Feldes



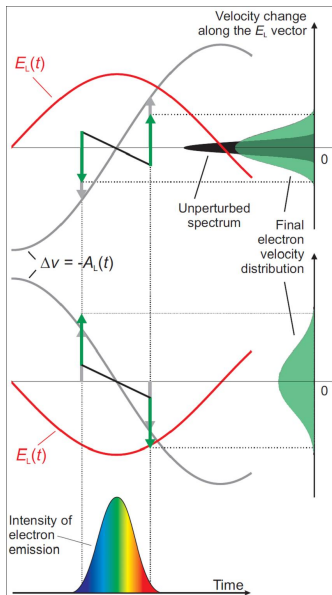


# Zeitdiagnose von as-Röntgenpulse

- Das elektrische Feld des optischen Lasers ändert die kinetische Energie der nachgewiesenen Photoelektronen
- Es gilt:  $\Delta v(t) \propto -A_L(t)$
- $A_L(t) :=$  Vektorpotential des optischen Laserfeldes  
mit  $E_L(t) = -\frac{dA_L(t)}{dt}$



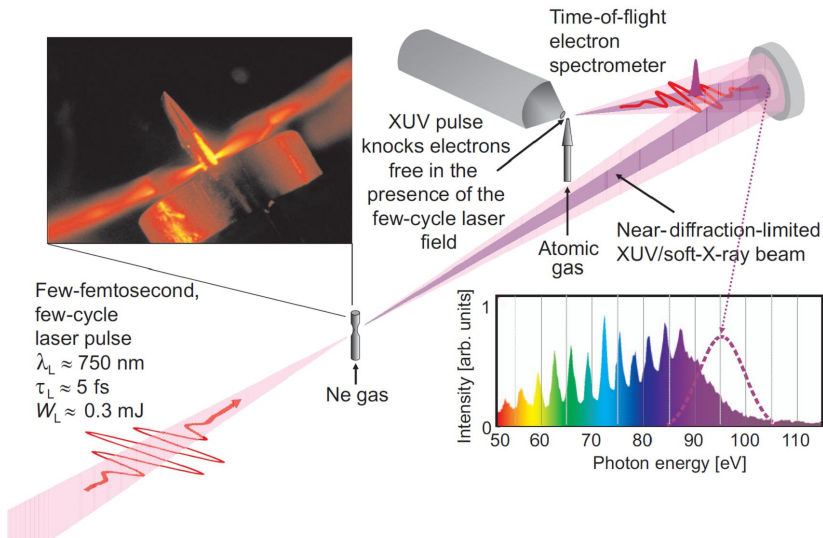
# Zeitdiagnose von as-Röntgenpulse



- Schmierbilder liefern sowohl Information bezüglich der as-Pulsdauer als auch des Zeit-Frequenzverlaufs ("chirp") durch Messungen für unterschiedliche Steigungen des Vektorpotentials
- as-Pulse mit chirp zeigen eine Änderung der kinetischen Energieverteilung

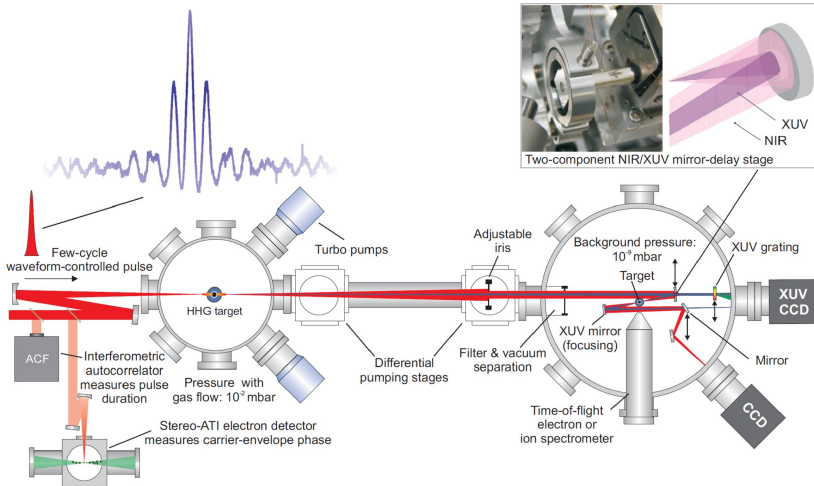
# Zeitdiagnose von as-Röntgenpulse

- Typischer Experimenteller Aufbau (TU-Wien)

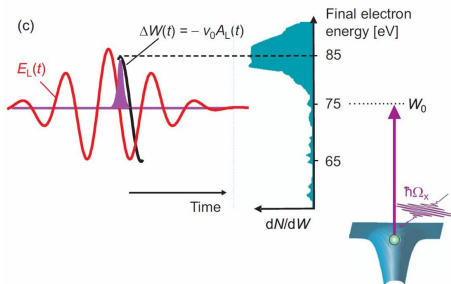
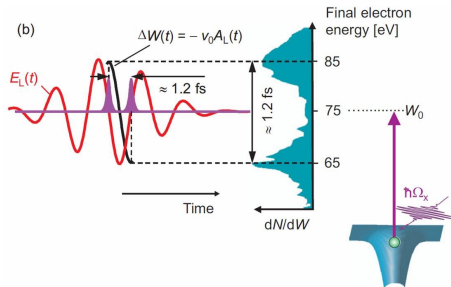


# Zeitdiagnose von as-Röntgenpulse

- Typischer Experimenteller Aufbau (MPI-Quantenoptik, München)



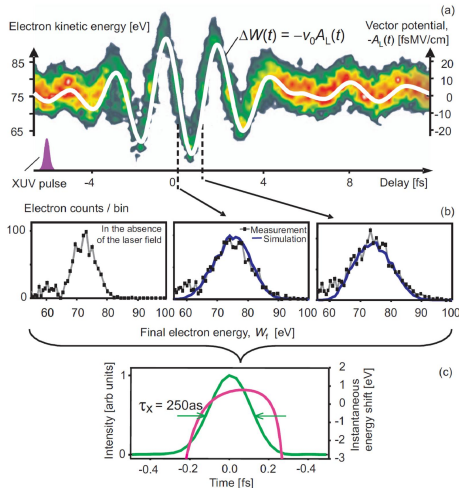
# Zeitdiagnose von as-Röntgenpulsen



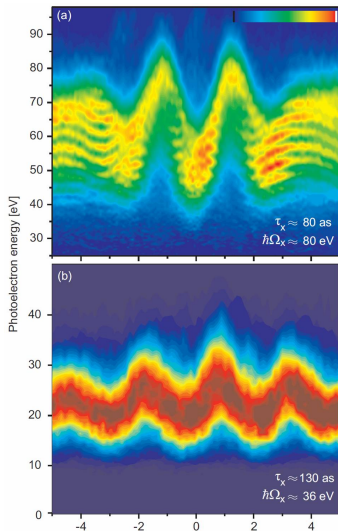
- Messung des Effektes einer Sinus- bzw. Cosinus-Trägerfrequenz des optischen Lasers relativ zur Einhüllenden  
 ⇒ Beobachtung von zwei bzw. einem as-Puls innerhalb eines optischen Zyklus

# Zeitdiagnose von as-Röntgenpulse

- Neben der Charakterisierung des as-Röntgenpulses ist auch die Abbildung des optischen Laserfeldes in Echtzeit möglich

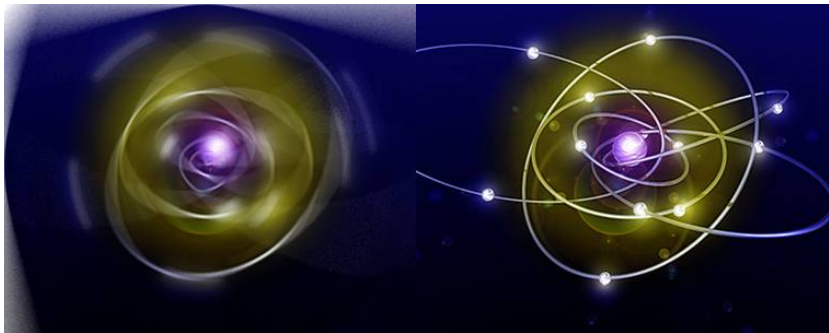


# Derzeitiger Weltrekord in der Erzeugung von as-Röntgenpulsen



# Erzeugung und Zeitdiagnose von as-Röntgenpulse

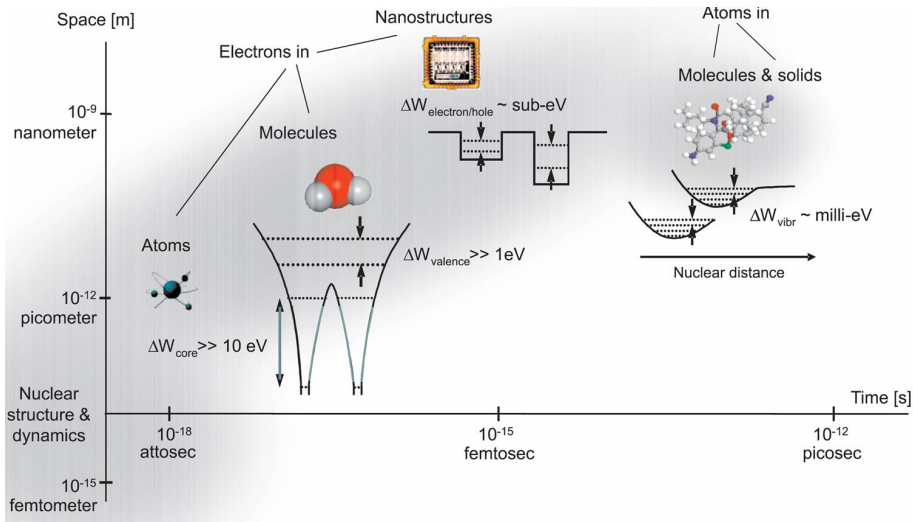
- Zeit, die ein Elektron für einen Umlauf auf der ersten Bohrschen Bahn benötigt:  $\approx 24$  as
- Nun haben wir eine Technik an der Hand, um Elektronen bei der Arbeit zu beobachten...



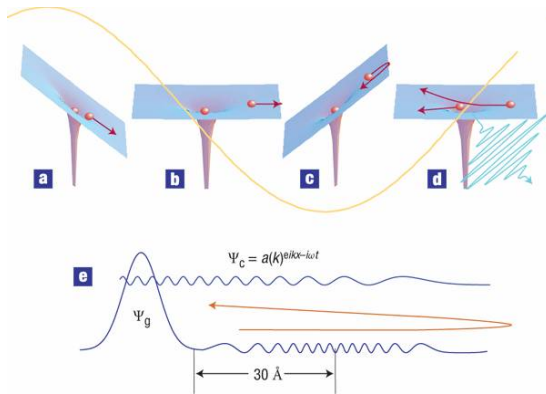
Quelle: T. Pfeifer, MPI-Kernphysik, Heidelberg und <http://startswithabang.com/?p=1795>



## Zeit- und Längenskalen



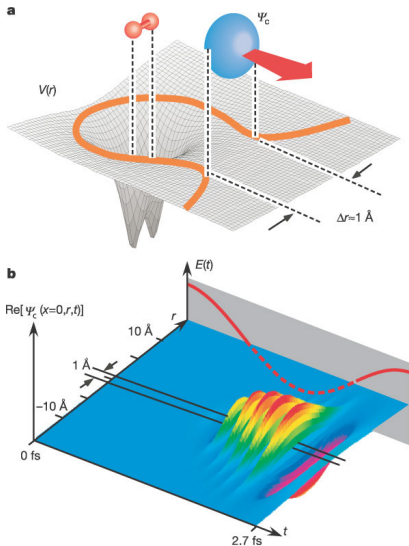
# HHG-Tomographie von Elektronenwellenfunktionen



Nature Physics 3, 381 (2007)

- Rückgestreutes Elektron lässt sich als Wellenpaket beschreiben ( $\lambda_{De-Broglie,max} \approx \text{\AA}$ ) → atomare Auflösung !

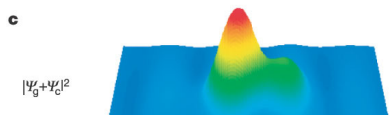
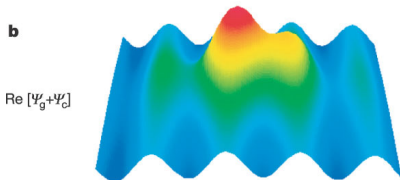
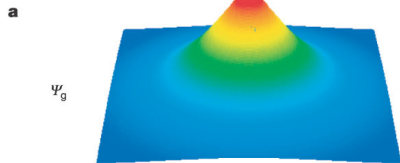
# HHG-Tomographie von Elektronenwellenfunktionen



- Sattelpunktbereich  $\Delta r$  während des Tunnelprozesses hängt ab von molekularer Ausrichtung
- Teil der Wellenfunktion verbleibt im Grundzustand
- Wellenpaket-Propagation führt zur lateralen Ausschmierung wegen ( $\Delta p \approx \hbar / \Delta r$ )
- Molekül "sieht" ebene Welle während der Rekombination
- Was passiert während der Rekombination ?

Nature 432, 867 (2004)

# HHG-Tomographie von Elektronenwellenfunktionen



- Induzierter Dipol  $d(t)$  durch Interferenz von Wellenfunktion im elektronischen Grundzustand und ebener Welle der Rückgestreuung
- HHG-Emission aufgrund Dipol-Oszillation
- Phase, Amplitude und kinetische Energie werden auf HHG-Photon übertragen
- Interferenz hängt ab von der Orientierung des Moleküls  
→ Tomographie

# HHG-Tomographie von Elektronenwellenfunktionen

- Quantenmechanische Betrachtung:
- Formal messen wir das Dipolmatrixelement  $D_{ki}(\omega)$ , da die HHG-Intensität gegeben ist durch  $I(\omega) \propto |D_{ki}|^2$
- Beachte: HHG-Erzeugung ist formal nichts anderes als Photoionisation - Anregung von einem gebundenen elektronischen Zustand  $\psi_g$  in einen Kontinuumszustand  $\psi_c$  !  
Somit ist klar, dass

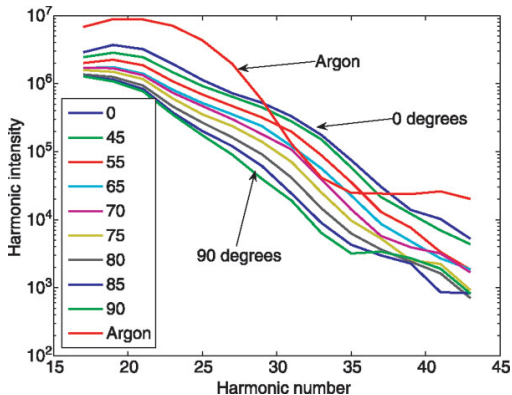
$$D_{ki} \propto \int \psi_g(r) e r \psi_c d\tau_{el} \quad (1)$$

bzw.

$$D_{ki} \propto \int \psi_g(r) e r \exp[ik(\omega)x] dr \quad (2)$$

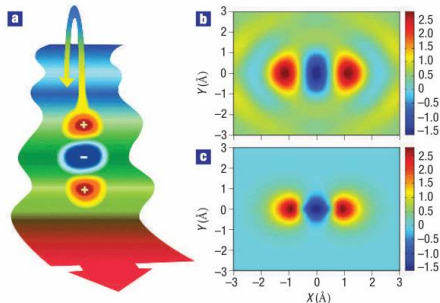
- HHG-Spektrum ist experimentelle Bestimmung der eindimensionalen Fourier-Transformierten von  $r\psi_g(r)$
- Winkelabhängige Messung liefert 3-D Wellenfunktion !

# HHG-Tomographie von Elektronenwellenfunktionen



- Experiment: HHG-Erzeugung an  $N_2$
- Messung winkelabhängiger Spektren
- HOMO von  $N_2$ :  $2p \sigma_g$

# HHG-Tomographie von Elektronenwellenfunktionen



Nature Physics 3, 381 (2007)

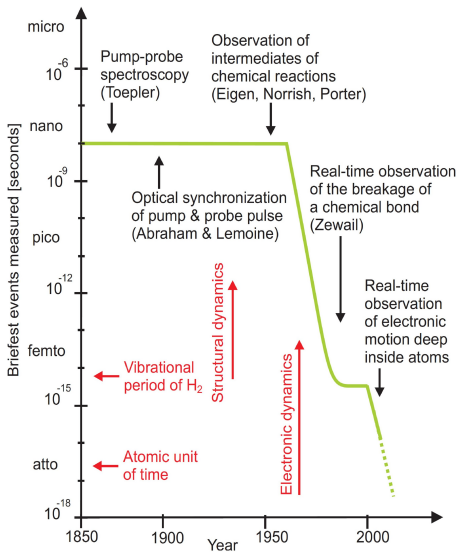
- (a) Interferenz zwischen rückgestreutem Elektron und Wellenfunktion im elektronischen Grundzustand
- (b) Rekonstruktion des Grundzustands  $\psi_g(r)$  aus exp. Daten
- (c) Theoretische Berechnung des  $2p \sigma_g$

# HHG-Tomographie von Elektronenwellenfunktionen

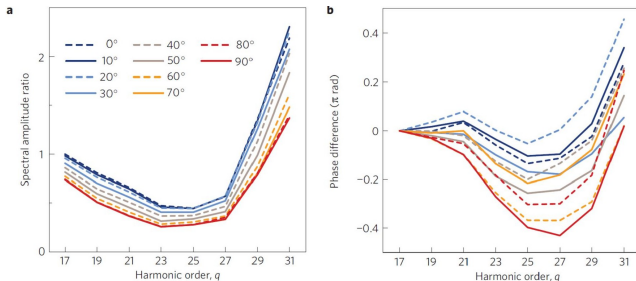
- Die Skizze zeigt den Moment, wenn die De-Broglie Wellenlänge gleich der Größe von  $2p \sigma_g$  ist.
- Die Interferenz ist zu einem früheren Zeitpunkt anders (längere Wellenlänge)
- Die Interferenz ist zu einem späteren Zeitpunkt anders (kürzere Wellenlänge)
- Interferenz unterscheidet sich für verschiedene Ausrichtungen des Moleküls
- Alle diese Informationen stecken im HHG-Spektrum



# Zeitabhängige HHG-Tomographie



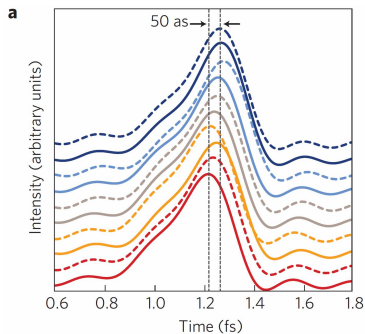
# Zeitabhängige HHG-Tomographie



Nature Physics 6, 200 (2010)

- Wiederholung der HHG Erzeugung an  $N_2$ -Molekülen
- Bestimmung der spektralen Intensität der Harmonischen mit höherer Auflösung
- Bestimmung der spektralen Phase der Harmonischen mit höherer Auflösung

# Zeitabhängige HHG-Tomographie

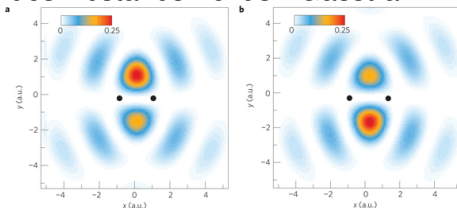


Nature Physics 6, 200 (2010)

- Bestimmung des Zeitfrequenzverlaufs (chirp) der as-Pulse mit höherer Auflösung

# Zeitabhängige HHG-Tomographie

- Variation des Zeitpunktes der Rekombination beispielsweise durch Variation des Abstands Fokus - Gasstrahl

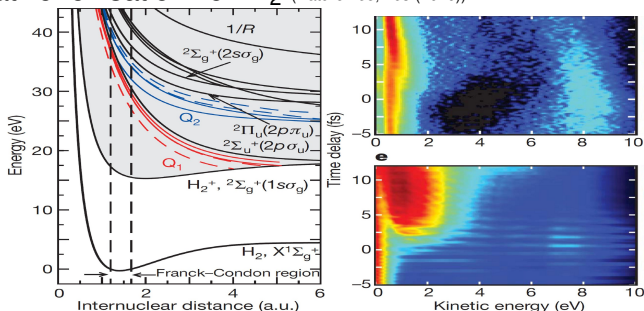


Nature Physics 6, 200 (2010)

- Im Tunnelprozess besitzt auslaufendes Elektronenwellenpaket auch einen Anteil des HOMO-1 ( $\sigma_g$ -Symmetrie)
- HOMO und HOMO-1 liegen nur ca. 1.4 eV auseinander
- Zustände überlagern kohärent (Kopplung)
- Aufgrund unterschiedlicher Symmetrie haben beide Zustände stark unterschiedliche Ionisationswahrscheinlichkeiten als Funktion der Ausrichtung

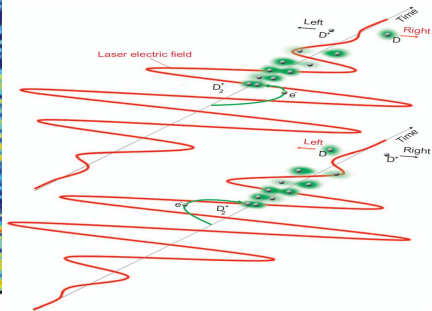
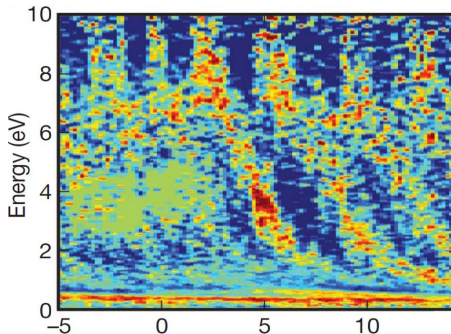
# Pump-Probe Spektroskopie mit as-Auflösung

- Dissoziative Ionisation von  $H_2$  (Nature 465, 763 (2010))



- as-Pump (20-40eV) ionisiert bzw. bevölkert hochangeregte, autoionisierende Zustände (z.B.  $Q_1$ )
- 6fs (800nm) Probe-Puls koppelt verschiedene angeregte Zustände als Funktion der Zeitverzögerung
- Molekülion dissoziiert und kinetische Energie der  $H^+$ -Ionen ist zeitabhängig

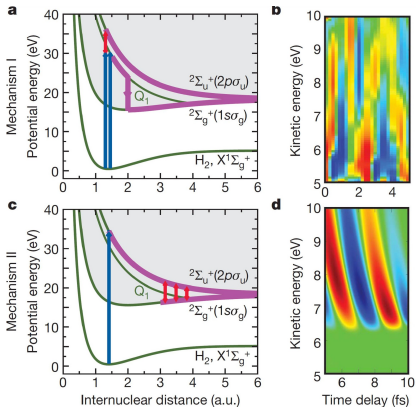
# Pump-Probe Spektroskopie mit as-Auflösung



Nature 465, 763 (2010)

- Ladungslokalisation oszilliert aufgrund der kohärenten Kopplung angeregter Zustände
- Phase der Lokalisation hängt ab von  $\Delta t$

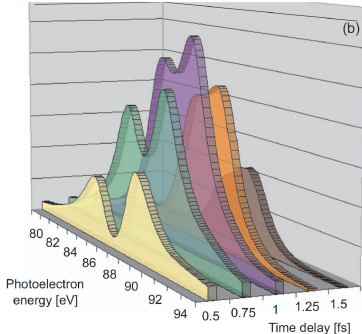
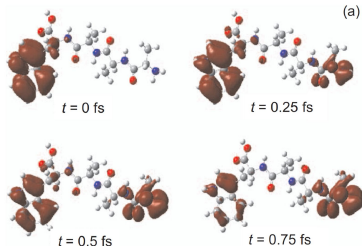
# Pump-Probe Spektroskopie mit as-Auflösung



- Überlappen 300as Pump- und 6fs Probepuls zeitlich, zeigt die Phase eine Kopplung an den autoionisierenden Zustand  $Q_1$
- Für  $\Delta t > 6$  fs koppeln elektronische Wellenfunktionen im molekularen Ion
- Theorie bestätigt unterschiedliches Phasenverhalten

- as Pump-Probespektroskopie zeigt molekularen Film der Elektronendynamik während der Dissoziation
- Wir lernen, was die Elektronen beim Bindungsbruch machen !

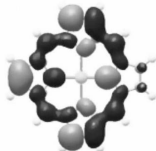
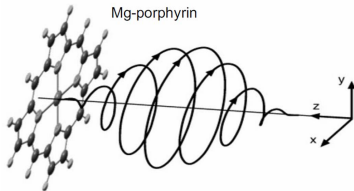
# Zukunft: Ladungstransfer in Biomolekülen



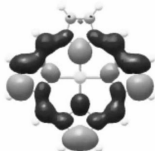
- Theorie: Ladungsmigration im Tryptophan-Tetrapeptid nach optischer Anregung (Pump-Puls)
- Ladungstransferprozesse sind relevant für Photovoltaik, Photosynthese, molekulare Elektronik etc.
- as-Probepuls erzeugt unterschiedliche Photoelektronenverteilung als Funktion von  $\Delta t$



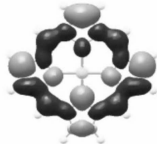
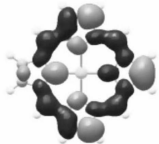
# Zukunft: Von Mikrowellenelektronik zu kontrollierter, molekularer Lichtwellenelektronik



$t = 4.53$  fs



$t = 4.84$  fs



- Ringströme mittels zirkular polarisiertem Licht in Mg-Porphyrin
- $\approx 0.1$  mA innerhalb des Moleküls
- Magnetfeld von ca.  $10^4$  T wäre nötig, um ähnliche Ströme zu erzeugen
- Vergleich: Supraleitende Magnete am LHC  $\rightarrow 8$  T