

# Elektronenwellen nach Maß

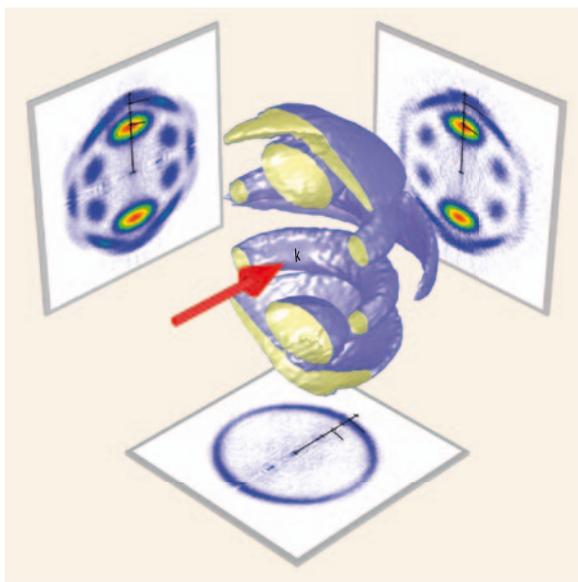
Wie sich „Designerelektronen“ maßgeschneidert erzeugen und steuern lassen.

Matthias Wollenhaupt, Marc Krug und Thomas Baumert

Vor hundert Jahren ließ sich der Photoeffekt noch mit einfachen Lampen untersuchen und im Teilchenbild des Elektrons deuten. Heute erlauben es hingegen Femtosekunden-Laser mit ausgefeilten Lichtpulsen, die Wellenfunktion des emittierten Elektrons maßzuschneidern und damit Elektronenwellenpakete fast nach Belieben zu erzeugen. Eine Anwendung solcher „Designerelektronen“ ist die hochempfindliche Analytik in der Gasphase, z. B. um chirale Moleküle zu identifizieren.

Albert Einsteins Theorie des Photoeffekts hat wesentlich zur Entwicklung der Quantenmechanik beigetragen. In seiner berühmten Arbeit schrieb er 1905: „In die oberflächliche Schicht des Körpers dringen Energiequanten ein, und deren Energie verwandelt sich wenigstens zum Teil in kinetische Energie der Elektronen. Die einfachste Vorstellung ist die, daß ein Lichtquant seine ganze Energie an ein einziges Elektron abgibt; ... Ein im Innern des Körpers mit kinetischer Energie versehenes Elektron wird, wenn es die Oberfläche erreicht hat, einen Teil seiner kinetischen Energie eingebüßt haben. Außerdem wird anzunehmen sein, daß jedes Elektron beim Verlassen des Körpers eine (für den Körper charakteristische) Arbeit  $W$  zu leisten hat, wenn es den Körper verläßt. Mit der größten Normalgeschwindigkeit werden die unmittelbar an der Oberfläche normal zu dieser erregten Elektronen den Körper verlassen. Die kinetische Energie solcher Elektronen ist  $h \cdot \nu - W$ “ [1].<sup>1)</sup> In der gleichen Arbeit zieht er auch den Vergleich zu Philipp Lenards Versuchen zum Photoeffekt. Lenard experimentierte damals mit Hilfe von Bogen- und Funkenlicht sowie elektrometrischer Methoden und Fluoreszenz-Schirmen in einfachen Vakuumröhren und fand dabei die fundamentale Gesetzmäßigkeit, dass bei wachsender Lichtintensität die Zahl der Elektronen wächst, nicht jedoch deren Energie.

Auch heute noch spielt der Photoeffekt in der modernen Grundlagenforschung eine zentrale Rolle. Bogen- und Funkenlicht sind allerdings längst modernen Strahlquellen wie Laser, Synchrotrons und Freie-Elektronen-Laser gewichen. Zur Detektion dienen ausgeklügelte zeit- und positionsempfindliche Detektoren statt Fluoreszenzschirmen. So wird in der Oberflächenphysik mit Photoelektronenspektroskopie routinemäßig die elektronische Struktur neuer Materialien untersucht, in der Molekülphysik dienen Femto-



Wie komplex ein Designerwellenpaket aufgebaut sein kann, zeigen dieser Blick in sein Inneres und die drei Schnitte der Elektronendichteverteilungen (vgl. Abb. 5).

sekundenmethoden dazu, die intramolekulare Dynamik an freien Molekülen direkt zu analysieren, und in der Atomphysik ist die Anregung in inneren Schalen bis in den Attosekundenbereich direkt messbar. Zudem übersteigen die elektrischen Feldstärken in intensiven Laserfeldern diejenigen elektronischer Bindungen, so dass die Ionisation feldgetrieben stattfindet.

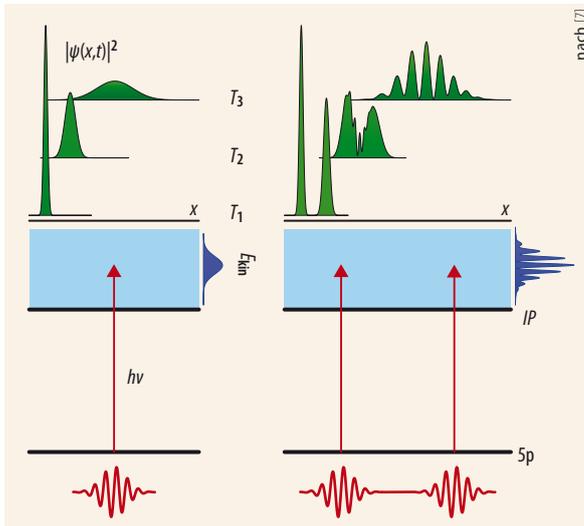
Während zur Deutung der ersten Experimente zum Photoeffekt ein Teilchenbild des Elektrons genügte, zeigten Clinton Davisson und Lester Germer 1927 in ihrem berühmten Beugungsexperiment an Nickel den

## KOMPAKT

- Designerelektronen sind Elektronenwellenpakete mit maßgeschneiderter Impulsverteilung im Kontinuum.
- Sie lassen sich durch Multiphotonenionisation von Kalium-Atomen mit polarisationsgeformten und intensiven Femtosekunden-Laserpulsen erzeugen.
- Die Erzeugung beruht auf dem Wechselspiel von Auswahlregeln bei der Anregung und Ionisation sowie der Interferenz der Materiewellenpakete im Kontinuum infolge der kohärenten Laseranregung.
- Zur Messung der dreidimensionalen Photoelektronen-Winkelverteilung (3D-PW) dient eine Kombination des etablierten „Velocity Map Imagings“ (VMI) mit einem tomographischen Rekonstruktionsverfahren.

1) Die Bezeichnungen sind dem heutigen Gebrauch angepasst.

Prof. Dr. Matthias Wollenhaupt, Prof. Dr. Thomas Baumert, Institut für Physik und CINSaT, Universität Kassel, Heinrich-Plett-Straße 40, 34132 Kassel, Dr. Marc Krug, Opto-Medical Technologies GmbH, Maria-Goepfert-Straße 1, 23562 Lübeck



**Abb. 1** Der Photoeffekt mit fs-Laserpulsen liefert aufgrund deren spektraler Breite ein Spektrum an kinetischen Energien  $E_{kin} = h\nu - IP$  (blaue Photoelektronenspektren oberhalb des Ionisationspotentials  $IP$ ). Ein einzelnes freies Elektronenwellenpaket ( $|\psi(x,t)|^2$ , grün) verbreitert sich nach Anregung mit einem ultrakurzen Laserpuls (a, gezeigt zu den Zeiten  $T_1 < T_2 < T_3$ ). Angeregt mit einem phasenkohärenten Doppelpuls führt die Interferenz der beiden Teilwellenpakete im Kontinuum zu den Interferenzstreifen im Photoelektronenspektrum (b, vgl. Infokasten).

Wellencharakter von Elektronen. Heutzutage dient oft eine gepulste Lichtquelle zur Ionisation, und das Bild eines freien Wellenpakets rückt zur Beschreibung des ausgelösten Elektrons in den Vordergrund. Da ein Wellenpaket aus einer Überlagerung vieler Wellen besteht, stellt sich die spannende Frage, ob sich diese Wellenpakete im Sinne einer Fourier-Synthese „designen“ lassen.

Diese Frage kann man mit modernen Methoden der Ultrakurzzeitphysik angehen. Die Unschärferelation zwischen Pulsdauer und Bandbreite bedingt, dass Femtosekunden-Laserpulse eine hohe spektrale Band-

breite besitzen. So benötigt ein 5 fs-Laserpuls fast das gesamte sichtbare Spektrum. Aufgrund der Kohärenz der Strahlung ist es möglich, Amplitude und Phase der einzelnen Frequenzkomponenten des Pulses exakt einzustellen und in einer optischen Fourier-Synthese die zeitliche Pulseinhüllende, die Momentanfrequenz und neuerdings sogar den instantanen Polarisationszustand der geformten Laserpulse auf der fs-Skala zu kontrollieren [2, 3]. Damit lässt sich auf dieser Zeitskala in weiten Bereichen beliebig strukturiertes Licht erzeugen.

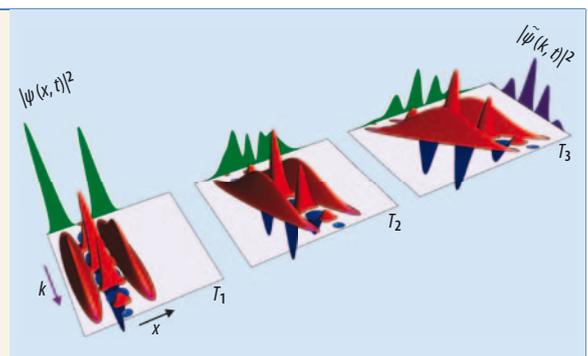
Unter isolierten Bedingungen bewirkt die Wechselwirkung der kohärenten Laserstrahlung mit Materie eine kohärente Dynamik der Materiewellen. Die gezielte Manipulation der konstruktiven oder destruktiven Interferenz dieser Materiewellen erlaubt es dann, Kontrolle über Materie auszuüben [4–6]. Dies ist der Schlüssel, um Designerwellenpakete zu erzeugen. Geschieht die Ionisation mit mehreren Photonen, so lässt sich die elektronische Struktur der verwendeten Atome oder Moleküle zusätzlich zur Synthese des Wellenpakets nutzen. Dabei erweitern lichtinduzierte Stark-Effekte das Arsenal der Kontrollmethoden beträchtlich [6]. Im Umkehrschluss kann die Vermessung eines Wellenpakets, das mit speziell strukturiertem Licht beispielsweise aus der Ionisation an Molekülen einer bestimmten Struktur entstammt, dazu dienen, andere Molekülstrukturen zu erkennen, da das Wellenpaket über hochempfindliche Interferenzen erzeugt wird.

### Interferenz im Kontinuum

Im konzeptionell einfachsten Experiment erzeugt ein kohärenter fs-Doppelpuls die Interferenzen freier Elektronenwellenpakete durch Ionisation von Kalium-Atomen (aus dem zuvor präparierten 5p-Zustand), die

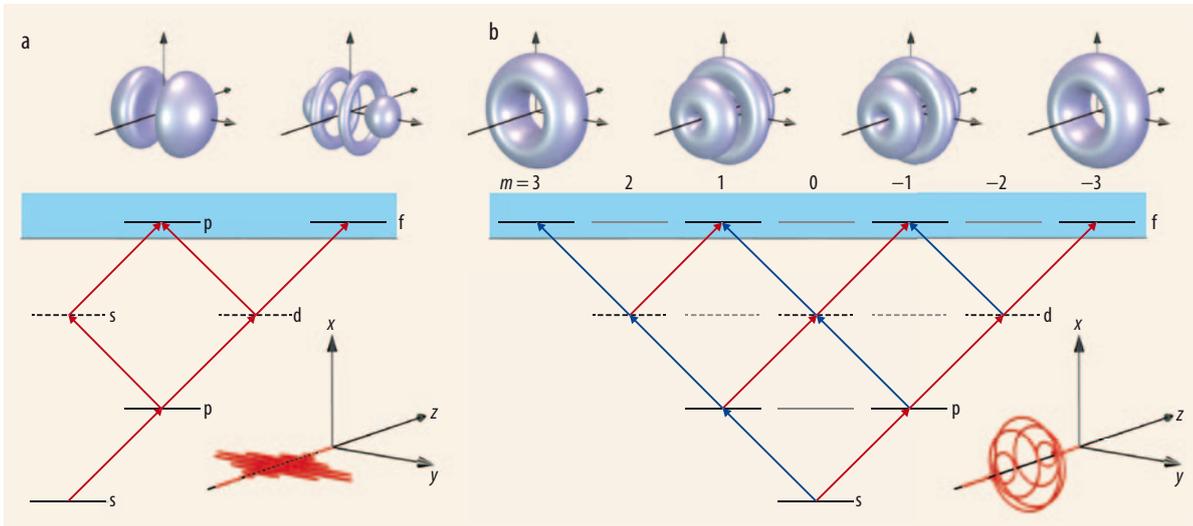
### WIGNER-FUNKTION

Die Zeitentwicklung eines freien kohärenten Elektronenwellenpakets nach Anregung mit einem kohärenten Doppelpuls lässt sich mit der **Wigner-Funktion**  $W(x, k, t)$  beschreiben [16] (Abb.). Diese ist eine Quasi-Wahrscheinlichkeitsverteilung, welche die Eigenschaften einer Wellenfunktion im Phasenraum veranschaulicht. Die Wahrscheinlichkeitsdichte im Ortsraum ergibt sich aus ihr durch Integration entlang der Impulsachse  $|\psi(x, t)|^2 = \int W(x, k, t) dk$ . Sie zeigt, dass unmittelbar nach der Ionisation mit einem Doppelpuls zum Zeitpunkt  $T_1$  zwei getrennte Teilwellenpakete auslaufen. Die Interferenzterme der Wigner-Funktion zeigen die Kohärenz der Teilwellenpakete und befinden sich stets zwischen diesen. Zum Zeitpunkt  $T_1$  heben sich die Interferenzterme bei Integration entlang der Impulsachse vollständig auf. Das Interferenzmuster der Impulsverteilung des freien Elektrons  $|\tilde{\psi}(k, t)|^2 = \int W(x, k, t) dx$ , welche sich durch Integration der Wigner-Funktion entlang der Ortsachse ergibt, ist während der freien Zeitentwicklung unverändert. Mit der Zeit überholen die schnellen Komponenten beider Teilwellenpakete (mit großem Impuls  $\hbar k$ ) die langsameren ( $T_2$ ). Dadurch wird die anfängliche Wigner-Verteilung geschert, und die Interferenzterme verschwinden nicht mehr bei Integration entlang der Impulsachse. Dies führt zu transienten Interferenzen im



Die Wigner-Funktion (positive Werte rot, negative blau) des freien Elektronenwellenpakets. Durch Integration ergibt sich daraus die Wahrscheinlichkeitsdichte im Ortsraum (grün) bzw. Impulsraum (magenta).

Ortsraum. Für noch größere Zeiten ( $T_3$ ) ist die Wigner-Verteilung soweit geschert, dass sich das Interferenzmuster im Ortsraum dem stationären Interferenzmuster im Impulsraum annähert. Infolge der quadratischen Dispersion der Materiewellen im Vakuum hat sich das freie Wellenpaket in seine eigene Impulsverteilung entwickelt.



**Abb. 2** Die erlaubten Quantenpfade, die bei der Multiphotonenionisation zur Interferenz im Kontinuum beitragen, sind durch quantenmechanische Auswahlregeln bestimmt. (a) Im Kalium-Atom führen  $\Delta l$ -Auswahlregeln bei der resonanzverstärkten Multiphoton-Ionisation (REMPI) zur Überlagerung von auslaufenden p- und f-Elektronenwellenpaketen

– hier dargestellt für Anregung mit einem linear polarisiertem Laserpuls. (b) Bei Anregung mit elliptisch polarisiertem Licht ist die Form des freien Elektronenwellenpakets infolge der  $\Delta m$ -Auswahlregeln durch kohärente Superposition aller Zustände mit ungeraden Quantenzahlen  $m$  gegeben [10]. Die Amplituden der einzelnen Zustände

ergeben sich aus der Interferenz aller erlaubten Quantenpfade, deren Übergangswahrscheinlichkeit durch die zeitabhängige Elliptizität des polarisationsgeformten Laserpulses kontrolliert wird. Die Feinstrukturaufspaltung und damit verbundene Spinwellenpakete sind in dieser Darstellung nicht gezeigt.

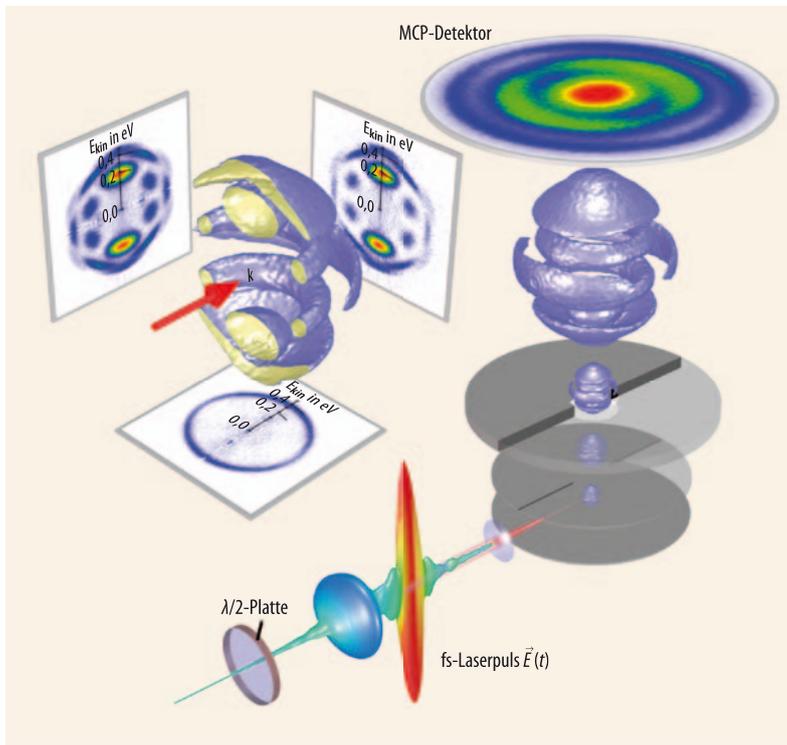
im Photoelektronenspektrum direkt nachweisbar sind (Abb. 1) [7]. Durch die Wechselwirkung mit dem Laserpuls (Zeitpunkt  $T_1$ ) entsteht in der Nähe des Wechselwirkungsgebiets ein scharf lokalisiertes auslaufendes Wellenpaket (Abb. 1a). Im Vakuum zerläuft das Wellenpaket während der weiteren Ausbreitung ( $T_2$  und  $T_3$ ) – ein Lehrbuchbeispiel für die Dispersion einer quantenmechanischen Materiewelle. Max Born hat jedoch bereits 1955 darauf hingewiesen, dass sich die Dynamik einer solchen Wellenfunktion mit der klassischen Vorstellung eines Teilchenschwarms unterschiedlicher Anfangsgeschwindigkeiten veranschaulichen lässt [8].

Die Ionisation mit einem kohärenten Doppelpuls verdeutlicht besonders gut, wie ein strukturiertes Elektronenwellenpaket durch Interferenz zweier partieller Wellenpakete entsteht und sich zeitlich entwickelt (Abb. 1b). Da das Alkalimetall Kalium nur ein äußeres Elektron besitzt, setzt die Ionisation mit einem Doppelpuls stets höchstens ein Elektron frei. Es besteht also eine gewisse Wahrscheinlichkeit für die Ionisation während des ersten Pulses und die gleiche Wahrscheinlichkeit für eine Ionisation während des zweiten Pulses. Die Wellenfunktion in Doppelhöcker-Gestalt veranschaulicht diese Tatsache (Abb. 1b,  $T_1$ ). Infolge der Dispersion verbreitern sich die beiden Teilwellenpakete und laufen ineinander. Die Interferenz der kohärenten Teilwellenpakete – gewissermaßen die Interferenz des Elektrons mit sich selbst – ist für die anschließenden transienten Interferenzmuster verantwortlich ( $T_2$ ). Erst zu einem späteren Zeitpunkt ( $T_3$ ) entsteht ein Interferenzmuster, welches quasistationär ist, seine Form also qualitativ nicht mehr verändert. Aufgrund der quadratischen Dispersion des Vakuums für Materiewellen,  $E(k) = \hbar^2 k^2 / 2m$ , entwickelt sich das Wellen-

paket exakt in sein eigenes Spektrum (Infokasten). Daher misst das Time-of-Flight-Spektrometer die Impulsverteilung  $|\tilde{\psi}(k, t)|^2 \propto |\psi(x, t)|^2$  im Ortsraum. Durch die fraktionale Fourier-Transformation lässt sich dieser Zusammenhang mathematisch beschreiben, welcher der Beugung von Lichtwellen an einer Apertur in der Optik analog ist: Im Nahfeld ist ein mit dem Abstand zur Apertur veränderliches Interferenzmuster zu beobachten (Fresnel-Beugung, entspricht kleinen Zeiten in Abb. 1), das sich im Fernfeld in das Spektrum der Transmissionsfunktion entwickelt (Fraunhofer-Beugung, entspricht großen Zeiten in Abb. 1). Alternativ lässt sich die Interferenz der freien Elektronenwellenpakete auch als „Doppelspalt in der Zeit“ verstehen [7, 9]. In diesem Bild ist die Beobachtbarkeit des Interferenzmusters komplementär zur „welcher Weg“-Information über die Ionisation, d. h. zur Information, ob diese während des ersten oder des zweiten Teilpulses stattgefunden hat. Neben diesen grundsätzlichen Aspekten der Ionisation mit kohärenten Laserpulsen haben sich Interferenzen im Photoelektronenspektrum als grundlegend erwiesen, um Attosekunden-Laserpulse zu charakterisieren.

### Dreidimensional durch Auswahlregeln

Im Doppelpulsexperiment gelang es, die Impulsverteilung durch die Interferenz zweier Quantenpfade zu strukturieren. Ein weitaus höheres Maß an Kontrolle lässt sich erreichen, wenn Quantensysteme mit mehr als zwei interferierenden Pfaden vorliegen und zudem komplex geformte Pulse zur Anregung dienen. Diese erzeugen viele partielle Wellenpakete, die sich – analog



**Abb. 3** Erzeugung eines Designerwellenpakets mit Hilfe eines polarisationsgeformten fs-Laserpuls [6]: Um die dreidimensionale Elektronenwinkelverteilung tomographisch zu rekonstruieren, werden zweidimensionale Projektionen auf dem MCP-Detektor unter verschiedenen Winkeln gemessen. Dazu wird der polarisationsgeformte Laserpuls mit einer  $\lambda/2$ -Platte um seine Achse rotiert. Die bläulichen Gebilde sind die dreidimensional gemessenen und rekonstruierten Elektronenwellenpakete, welche die Zeitentwicklung des Elektronenwellenpakets im VMI-Photoelektronenspektrometer

andeuten. Ein eigens entwickelter hochauflösender Polarisationspulsformer [10] erzeugt den polarisationsgeformten Laserpuls. Dieser beginnt mit einem gegenüber der Zentralfrequenz rot verstimmt vertikal linear polarisierten Anteil und geht danach in einen blau verstimmt zirkular polarisierten Anteil über. Der Schnitt durch das Designerwellenpaket (oben links) erlaubt einen Blick in das Innere der komplexen Verteilung. Zudem sind die energiekalibrierten Elektronendichteverteilungen in den drei zentralen Schnittebenen herausprojiziert.

zur Interferenz der freien Elektronenwellenpakete im Doppelpulsperiment – während der Propagation kohärent überlagern.

Als Beispiel betrachten wir die resonanzverstärkte Multiphotonenionisation (REMPI) von Kalium-Atomen mit Hilfe geformter fs-Laserpulse. Die  $\Delta l$ -Auswahlregeln in diesem System erlauben folgende drei Quantenpfade für die Absorption der erforderlichen drei Lichtquanten  $s \rightarrow p \rightarrow d \rightarrow f$ ,  $s \rightarrow p \rightarrow d \rightarrow p$  und  $s \rightarrow p \rightarrow s \rightarrow p$  (Abb. 2a). Die Interferenzen dieser unterschiedlichen Pfade, mit ihren unterschiedlichen Übergangsmomenten und relativen Phasen, führen zu Überlagerungszuständen von p- und f-artigen freien Elektronenwellenpaketen. Umgekehrt bietet die Interferenz der freien Elektronenwellen aus unterschiedlichen Zuständen die Möglichkeit, diese Größen zu bestimmen und damit den Photoionisationsprozess „vollständig“ zu beschreiben [11]. Im Gegensatz zur Ionisation mit linear polarisierten Laserpulsen, bei denen die Auswahlregel  $\Delta m = 0$  nur Endzustände mit  $m = 0$  erlaubt, sind bei Multiphotonenionisation mit elliptisch polarisiertem Licht mit der Auswahlregel  $\Delta m = \pm 1$  Superpositionszustände

bestehend aus den vier  $m$ -Zuständen im Kontinuum  $m = -3, -1, 1, 3$  möglich (Abb. 2b). Diese kohärenten Überlagerungszustände beinhalten sowohl sämtliche um die  $z$ -Achse rotierten f-artigen Elektronenwellenpakete (Abb. 4a) als auch nicht-zylindersymmetrische Zustände (Abb. 4b). Hier stehen acht Quantenpfade:  $s(0) \rightarrow p(-1, 1) \rightarrow d(-2, 0, 2) \rightarrow f(-3, -1, 1, 3)$  für die Ionisation zur Verfügung: Die Absorption jedes (elliptisch polarisierten) Photons ändert die Quantenzahl um  $\Delta m = \pm 1$ , wobei deren Wahrscheinlichkeit vom speziellen Übergang und der Polarisation der Laserstrahlung abhängt. Dreidimensionale Kontrolle wird in diesem Experiment durch den zeitabhängigen Polarisationszustand des Laserpuls und den damit verbundenen  $m$ -Auswahlregeln mit nachfolgender Interferenz der freien Teilwellen erreicht.

### Transformation und Tomographie

Nach der raffinierten Erzeugung der Designerelektronen besteht die nächste Aufgabe darin, die dreidimensionale Gestalt des Designerwellenpakets, also die Photoelektronen-Winkelverteilung (3D-PW) zu messen. Weil diese vielfältige Informationen über die Photoionisations- und intramolekulare Dynamik enthält, sind eine Vielzahl hochdifferenzieller Messtechniken entwickelt worden [11]. Eine effiziente und recht einfache Methode besteht darin, die komplette Verteilung auf einen zweidimensionalen Detektor zu projizieren. Dazu verwenden wir das „Velocity Map Imaging“ (VMI), bei dem die Photoelektronen aus dem Wechselwirkungsgebiet mithilfe des elektrischen Felds eines Plattenkondensators in Richtung des zweidimensionalen MCP-Detektors beschleunigt werden (Abb. 3). Der Detektor bildet dann die transversale Verteilung der Impulse der Elektronen ab.

Die Bewegung der Elektronen im Spektrometer ergibt sich aus der Zeitentwicklung des dreidimensionalen Elektronenwellenpakets. Mathematisch lässt sich die Abbildung des Wellenpakets auf den zweidimensionalen MCP-Detektor durch eine Abel-Transformation beschreiben [12]. Wenn das Wellenpaket zylindersymmetrisch ist, ergibt sich bereits aus einer einzigen gemessenen 2D-Verteilung mithilfe der Abel-Inversion die 3D-Winkelverteilung. Bei linearer Polarisation der Laserstrahlung ist die Voraussetzung für die Inversion, dass der Polarisationsvektor parallel zur Detektorebene liegt. Entsprechend muss bei zirkularer Polarisation der  $k$ -Vektor der Laserstrahlung parallel zur Detektorebene orientiert sein.

Bereits elliptisch polarisierte Laserpulse verletzen die Voraussetzungen für die Abel-Inversion gleich zweifach: Zum einen ist das Elektronenwellenpaket im Allgemeinen aus der  $y$ - $z$ -Ebene gedreht und zum anderen nicht mehr zylindersymmetrisch (Abb. 4b). Ein neuer Ansatz zum Messen einer dreidimensionalen Elektronenwinkelverteilung beruht auf der tomographischen Rekonstruktion. Dazu rotiert eine  $\lambda/2$ -Platte den Puls. Die Projektion der 3D-PW wird

dann aus vielen unterschiedlichen Richtungen gemessen (Abb. 4a, b). Ein tomographischer Algorithmus rekonstruiert die 3D-Verteilung aus den gemessenen Projektionen. Dafür sind keine Annahmen über die Symmetrie des Wellenpakets erforderlich. In unseren Experimenten verwendeten wir typischerweise 36 VMI-Aufnahmen für die Rekonstruktion. Um das Verfahren zu validieren, generierten wir ein f-artiges Wellenpaket durch Ionisation mit linearpolarisierten Laserpulsen (Abb. 4a) und verglichen die tomographische Rekonstruktion mit der Abel-Inversion, mit hervorragender Übereinstimmung [13].

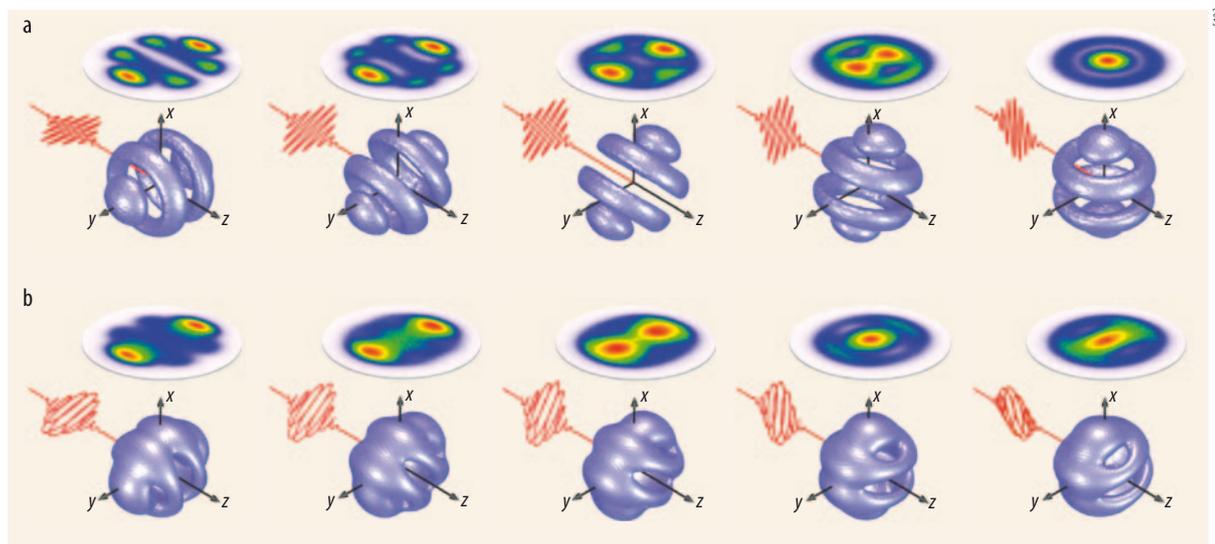
### Intensive und polarisationsgeformte Pulse

Die Rekonstruktion des Elektronenwellenpakets, welches mithilfe elliptisch polarisierten Lichts erzeugt wurde (Abb. 4b), ist ein besonders einfaches Beispiel für die Interferenz der vier interferierenden f-Wellenpakete unterschiedlicher  $m$ -Quantenzahl im Kontinuum. Weit komplexere Elektronenwellenpakete entstehen mit polarisationsgeformten Laserpulsen (Abb. 3). Generell eröffnet die Polarisationspulsformung die Möglichkeit, Laserpulse auf die vektorielle Eigenschaften der Licht-Materie-Wechselwirkung maßzuschneidern, d. h. den unterschiedlichen Dipolmomenten und Auswahlregeln während der Anregungsdynamik anzupassen [3]. Bereits im schwachen Laserfeld ist das effektive Multiphotonen-Anregungsspektrum phasen-, amplituden- und polarisationsmoduliert. Dies erklärt die Änderung der Winkelverteilung mit der Überschuss-

energie der Elektronen. Intensive Laserpulse, die eine nicht-störungstheoretische Wechselwirkung der Atome mit dem Laserfeld zur Folge haben, sind ein weiteres effektives Werkzeug zur Kontrolle der freien Designerwellenpakete durch geschickte Manipulation der gebundenen Elektronendynamik: Nach kohärenter Anregung eines elektronischen Wellenpakets – das einer lichtinduzierten Ladungssoszillation entspricht –, wird das Lichtfeld auf die Elektronendynamik in einer weiteren Wechselwirkung maßgeschneidert. Im intensiven Feld führt der AC-Stark-Effekt zu Energieverschiebungen von einigen hundert meV. Die Zeptosekunden-Präzision unseres Pulsformers [14] erlaubt nun, diese Energieverschiebungen gezielt und bipolar zu steuern [6], wodurch weitere Strukturierungsmöglichkeiten der freien Elektronenwellenpakete entstehen.

### Adaptiv optimiert

Besonders effektiv lassen sich Designerwellenpakete maßschneidern, wenn alle oben genannten Kontrollszenarien gleichzeitig angewendet werden, d. h. wenn die Intensität zur Kontrolle von Starkfeldeffekten, die Momentanfrequenz zur Kontrolle der kinetischen Energie der Photoelektronen und der instantane Polarisationszustand zur Kontrolle der Auswahlregeln gezielt zur Manipulation der Interferenzen im Kontinuum eingesetzt werden. Da im Prinzip eine unbegrenzte Anzahl von Pulsformen zur Verfügung steht, ist es in der Praxis schwierig, den optimalen Puls, der das Quantensystem in einen ganz bestimm-



**Abb. 4** Durch Rotation der linearen Polarisation des fs-Laserpulses mit einer  $\lambda/2$ -Platte lässt sich ein freies Elektronenwellenpaket tomographisch rekonstruieren (a, von links:  $0^\circ$ ,  $12^\circ$ ,  $22^\circ$ ,  $35^\circ$  und  $45^\circ$ ). Die im Experiment gemessenen und rekonstruierten Elektronenwellenpakete (bläuliche Strukturen) sind zusammen mit den zugehörigen gemessenen VMI-Bildern (in Falschfarben) und dem Laser-

puls dargestellt. Drei-Photonen-Ionisation von Kalium-Atomen mit linearpolarisierten Laserpulsen (800 nm, 30 fs) führt zu Winkelverteilungen mit überwiegend f-Symmetrie, denen kleine phasenverschobene p-Beiträge überlagert sind. Aufgrund der Zylindersymmetrie des Elektronenwellenpakets ist in diesem Beispiel die Abel-Inversion möglich. Die Anregung mit elliptisch polarisierten

Laserpulsen (b) verletzt die Voraussetzungen für die Abel-Inversion gleich doppelt: Das Elektronenwellenpaket ist aus der y-z-Ebene gedreht und nicht mehr zylindersymmetrisch. Mit Hilfe der Tomographie gelingt auch hier die dreidimensionale Rekonstruktion des Elektronenwellenpakets aus den gemessenen VMI-Aufnahmen.

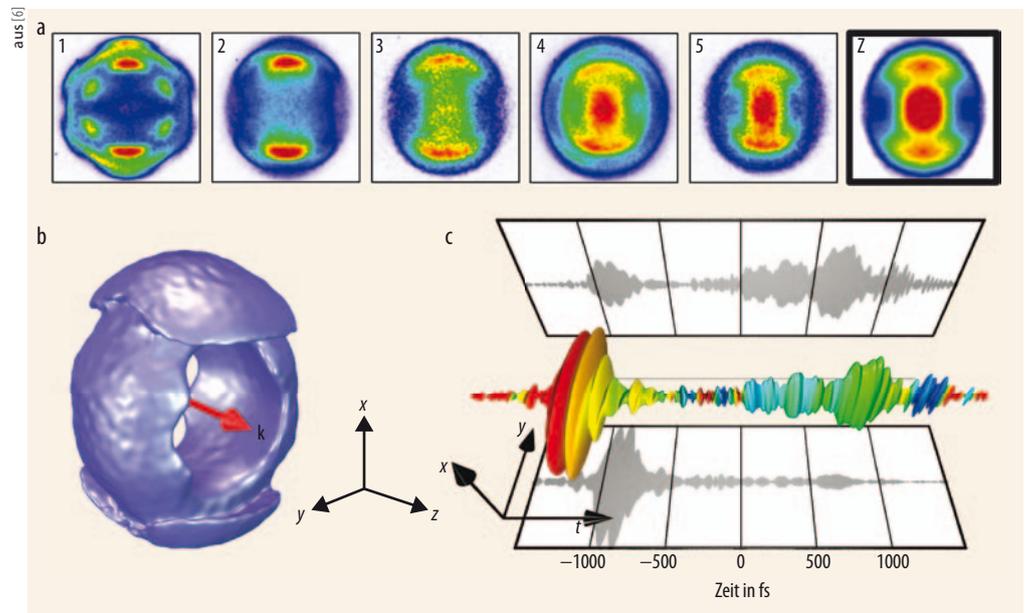


Abb. 5 Den Verlauf einer adaptiven Optimierung kann man anhand der gemessenen Projektion (a, 1 – 5) eines Elektronenwellenpaketes verfolgen – die Zielprojektion (Z) ist fett umrahmt. Eine tomographische Rekonstruktion des Wellenpakets (b) wurde für den optimalen Puls (c) durchgeführt (c).

ten Endzustand überführt, gezielt maßzuschneidern. Eine Lösung dieses hochdimensionalen Suchproblems ist die adaptive Optimierung, z. B. mit Hilfe genetischer Algorithmen [4, 5]: Bei diesem iterativen Verfahren werden Laserpulse parametrisiert, d. h. gewissermaßen genetisch codiert, und dann im Experiment deren „Fitness“ bestimmt. Durch Auswahl der jeweils geeignetsten Pulse setzen sich, genau wie in der biologischen Evolution, die optimal angepassten „Individuen“ durch. Mit Hilfe einer derartigen adap-

tiven Optimierung ist es kürzlich gelungen, die zweidimensionale Projektion einer Elektronenverteilung nahezu nach Belieben zu steuern [6]. Dazu wurde eine Zielprojektion definiert, beispielsweise eine hantelförmige Intensitätsverteilung, die kompatibel mit der Energieerhaltung und den zwei Symmetrieachsen der Verteilung ist (Abb. 5): Anhand der gemessenen VMI-Aufnahmen (1 – 5) lässt sich die adaptive Optimierung in Richtung auf die Zielprojektion (Z) verfolgen. Während die Bilder der ersten Generation eher an die Projektion eines f-Elektronenwellenpaketes erinnern, bilden sich danach bereits die äußeren Maxima der Hantel heraus. Im weiteren Verlauf füllt sich der zentrale Bereich zusätzlich auf, so dass schließlich die gemessene Projektion der Zielfunktion sehr nahe kommt. Für den optimalen Puls wurde eine tomographische Rekonstruktion des Elektronenwellenpakets durchgeführt (Abb. 5b). Der polarisationsgeformte Laserpuls (Abb. 5c), der die gewünschte Elektronenverteilung erzeugt, gibt Hinweise auf den zugrundeliegenden physikalischen Mechanismus.

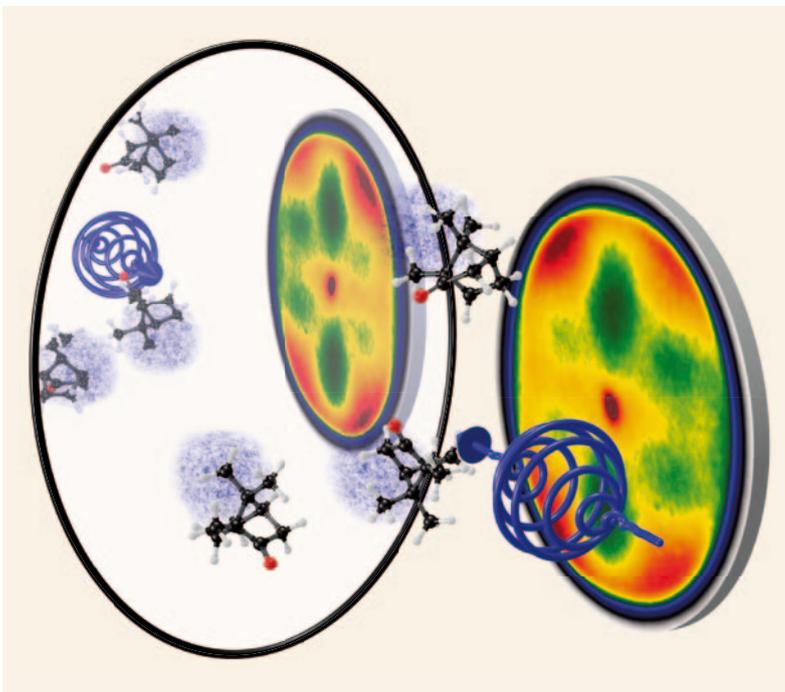


Abb. 6 Nach Anregung von zufällig orientierten chiralen R-(+)-Campher-Molekülen in der Gasphase mit linkszirkular polarisierten Femtosekunden-Laserpulsen (400 nm) werden die Photoelektronen überwiegend in Vorwärtsrichtung emittiert – angedeutet durch die blauen „Elektronenwolken“ und sichtbar in den

gemessenen Photoelektronenwinkelverteilungen. Im Spiegelbild ist die Situation für die spiegelbildlichen S-(-)-Campher-Moleküle dargestellt, die in einem getrennten Experiment vermessen wurden. Bei gleichem Drehsinn des Lichtes werden die Photoelektronen in die andere Richtung emittiert.

### Elektronenwellen für analytischen Scharfblick

Die gezielte Erzeugung von Designerelektronen zusammen mit VMI kann kleine Unterschiede in der elektronischen Struktur – insbesondere von Molekülen, die aus gleichen Bausteinen aufgebaut sind – identifizieren. Experimentell besonders einfach ist die Messung der Winkelverteilungen im Laborsystem an zufällig orientierten Molekülen in der Gasphase. Das Potenzial dieses Ansatzes zeigte sich kürzlich an den chiralen Molekülen Campher und Fenchon in der Gasphase [15]. In diesen Experimenten gelang es, eine ausgeprägte Asymmetrie der 3D-PW in Vorwärts/Rückwärts-Richtung in Bezug auf die Ausbreitung des Laserlichts zu beobachten (Abb. 6). Diese Messergebnisse sind ein wichtiger Schritt in Richtung auf eine hochempfindliche Analytik chiraler Moleküle in der

Gasphase und bieten einen neuen Ansatz, um die absolute Konfiguration chiraler Moleküle zu bestimmen. Auch das Prinzip der Rekonstruktion einer 3D-PW durch Kombination von VMI und Tomographie ist auf Moleküle übertragbar: Für Messungen im molekularen Bezugssystem kann man sich etwa die Vordrucksausrichtung eines angeregten Molekülensembles in einem Anregungsschritt zu Nutze machen. Damit steht eine zu hochdifferenziellen Koinzidententechniken komplementäre Messmethode zur Verfügung, die unabhängig davon einsetzbar ist, ob die Ionisation von einer Dissoziation begleitet wird und die Fragmentation die räumliche Lage des Muttermoleküls eindeutig abbildet. Alternativ lässt sich die 3D-PW im molekularen Bezugssystem mit Hilfe der Tomographie nach Ausrichtung von Molekülen, z. B. wieder mit Lasermethoden, messen. Designerelektronen, die zunächst ein faszinierendes Objekt der Grundlagenphysik sind, könnten sich auf diese Weise in der Pharmaindustrie als Analyseverfahren bewähren, die bei der Entwicklung neuer und sicherer Medikamente viel Zeit und Geld spart.

**Literatur**

[1] A. Einstein, Ann. Phys. **14**, 165 (1905)  
 [2] M. Wollenhaupt, A. Assion und T. Baumert, in: F. Träger (Hrsg.) Handbook of Lasers and Optics, Springer (2007)  
 [3] T. Brixner et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 208301 (2004)  
 [4] T. Brixner und G. Gerber, Physikalische Blätter, April 2001, S. 33  
 [5] M. Shapiro und P. Brumer, Quantum Control of Molecular Processes, Wiley-VCH, Berlin (2011)  
 [6] M. Wollenhaupt und T. Baumert, Faraday Discuss. **153**, 9 (2011)  
 [7] M. Wollenhaupt et al., Phys. Rev. Lett. **89**, 173001 (2002)  
 [8] M. Born, Physikalische Blätter, Heft 2, S. 49 (1955)  
 [9] F. Lindner et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 040401 (2005)

[10] M. Wollenhaupt et al., Appl. Phys. B **95**, 245 (2009)  
 [11] K. L. Reid, Mol. Phys. **110**, 131 (2012)  
 [12] G. A. Garcia, L. Nahon und I. Powis, Rev. Sci. Instr. **75**, 4989 (2004)  
 [13] M. Wollenhaupt et al., Appl. Phys. B **95**, 647 (2009)  
 [14] J. Köhler et al., Opt. Express **19**, 11638 (2011)  
 [15] C. Lux et al., Angew. Chem. Int. Ed. **51**, 5001 (2012)  
 [16] M. Winter, M. Wollenhaupt und T. Baumert, Optics Communications **264**, 285 (2006)

**DIE AUTOREN**

**Matthias Wollenhaupt** (FV Quantenoptik und Photonik) ist apl. Prof. an der Universität Kassel, wo er sich für die Grundlagen und Anwendungen der Femtosekunden-spektroskopie mit geformten Laserpulsen interessiert. Als Vorstandsvorsitzender des Regionalverbandes Hessen Mittelrhein Saar der DPG engagiert er sich für die Förderung des wissenschaftlichen Nachwuchses.



**Marc Krug** (FV Quantenoptik und Photonik sowie Strahlen- und Medizinphysik) ist Geschäftsführer der OptoMedical Technologies GmbH, ein Uni-Start-Up Unternehmen mit dem Ziel, die optische Kohärenztomographie in neue medizinische Disziplinen einzuführen.



**Thomas Baumert** (FV Molekülphysik sowie Quantenoptik und Photonik) ist seit 1999 als Professor für Experimentalphysik an die Universität Kassel berufen. Sein Forschungsinteresse gilt interdisziplinären Aspekten der Femtosekunden-spektroskopie und der ultraschnellen Kontrolle von Materie mithilfe maßgeschneiderter Lichtfelder.

