



Stoppuhr für Elektronen

Der diesjährige Nobelpreis für Physik zeichnet Forschungen aus, welche die entscheidenden Grundlagen für die Attosekundenphysik gelegt haben.

Cord Arnold und Matthias Kling

Die Historie der Attosekundenphysik ist eng verbunden mit Entwicklungen in der Lasertechnik. Pierre Agostini, Ferenc Krausz und Anne L’Huillier haben maßgeblich dazu beigetragen, Attosekundenpulse erzeugen zu können, mit denen sich die Dynamik von Elektronen in Materie untersuchen lässt. Ihnen gilt unser herzlichster Glückwunsch, genau wie allen anderen, die zur Entwicklung des Gebietes beigetragen haben!

Seit jeher ist es faszinierend, Phänomene zu verstehen, die sich nicht mit unseren Sinnen begreifen lassen, weil sie auf zu kleinen oder zu schnellen Skalen passieren oder beides gleichzeitig. Tatsächlich gibt es eine deutliche Korrelation zwischen der Größe eines Objektes und der Geschwindigkeit seiner zugrunde liegenden Dynamik. Menschen sind gewöhnt an Abläufe auf der Skala von Sekunden oder Sekundenbruchteilen. Für schnellere Dynamik benötigen wir Werkzeuge, wie Kameras mit kurzer Belichtungszeit oder stroboskopische Beleuchtung (Abb. 1). Nähert man sich der Größenskala von Molekülen und einzelnen Atomen, liegt die Dynamik für das Bilden

und Aufbrechen chemischer Bindungen im Femtosekunden-Bereich ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$). Das Sichtbarmachen solcher Prozesse würdigte 1999 der Chemie-Nobelpreis für Ahmed Zewail. Noch schneller ist die Dynamik der Elektronen: Im Bohrschen Atommodell lässt sich der Umrundung eines Wasserstoff-Atoms durch ein Elektron eine Dauer von etwa 150 Attosekunden ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) zuordnen.

Der diesjährige Nobelpreis in Physik würdigt die Entwicklung von Werkzeugen, die es erlauben, die Dynamik von Elektronen auf der Attosekunden-Zeitskala sichtbar zu machen und zu untersuchen. Ausgangspunkt war die Entwicklung immer intensiverer Laser, in deren Folge in den 1970er- und 1980er-Jahren der Untersuchung von Ionisationsprozessen in starken Laserfeldern viel Aufmerksamkeit gewidmet wurde. Pierre Agostini hatte dazu mit der Entdeckung der Above-Threshold Ionisation (ATI) beigetragen [1]. Später sollte sich herausstellen, dass dieser Prozess eng mit der Erzeugung von Attosekundenpulsen verknüpft ist. Als man anstelle von Photoelektronen die bei der Wechselwirkung emittierte Strahlung in Richtung des ionisierenden Laserstrahls untersuchte, machten zwei

◀ **Abb. 1** In der Attosekundenphysik bestimmt wie in der Fotografie die Belichtungszeit oder die Dauer des beleuchtenden Blitzes die Zeitauflösung, mit der sich ein dynamischer Prozess abbilden lässt.

Gruppen aus Frankreich und den USA eine überraschende Entdeckung [2, 3]: Dem damaligen Verständnis der nicht-linearen Optik folgend, erwartete man eine Reihe niedriger Harmonischer des ionisierenden Laserstrahls, deren Intensität mit steigender Ordnung exponentiell abnimmt. Die gemessenen Spektren zeigten allerdings darüber hinaus eine große Anzahl höherer Harmonischer, mit etwa gleicher Intensität („Plateau“), gefolgt von einem raschen Abfall („Cutoff“) (**Abb. 2**). Dies war besonders deutlich für die Messungen der französischen Gruppe vom Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) aus Paris-Saclay, der Anne L'Huillier angehörte. Sie machte in den folgenden mehr als 30 Jahren die hohen Harmonischen zum Kern ihrer Karriere. Mit einem infraroten Pikosekunden-Laser mit einer Wellenlänge von 1064 nm und Argon als Medium ließ sich Strahlung bis zur 33-ten Harmonischen messen – eine Beobachtung, die nicht mit der damaligen perturbativen nichtlinearen Optik vereinbar war.

Nach dieser überraschenden Entdeckung stellte sich direkt die Frage nach der zugrunde liegenden Physik und in Verbindung damit nach der zeitlichen Struktur der emittierten Strahlung. Die Spektren erinnern frappierend an die spektralen Moden eines Laserresonators. Von modengekoppelten Laseroszillatoren war bereits bekannt, dass eine feste Phasenbeziehung zwischen den spektralen Moden einem Zug kurzer Pulse in der Zeitdomäne entspricht. Mehrere



Anne L'Huillier

Forschungsgruppen wiesen bereits früh darauf hin, dass die enorme Bandbreite eines Spektrums hoher Harmonischer Pulse im Sub-Femtosekunden-Regime – also im Attosekunden-Regime – zulassen würde, wenn die Harmonischen phasengekoppelt wären [4, 5].

Die theoretische Interpretation der hohen Harmonischen entwickelte sich zu Beginn der 1990er-Jahre. Numerische Lösungen der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung durch Kenneth C. Schafer and Kenneth J. Kulander waren in der Lage, die Struktur der gemessenen Spektren zu reproduzieren und lieferten erste Erklärungen zur Erzeugung hoher Harmonischer sowie für die Abhängigkeit des Cutoffs von der Intensität und Wellenlänge der erzeugenden Laserpulse [6, 7]. Kurz darauf wurde etwa gleichzeitig von Kulander und Paul Corkum eine vereinfachte, semiklassische Interpretation vorgeschlagen, heute allgemein als Drei-Stufen- oder Rescattering-Modell be-

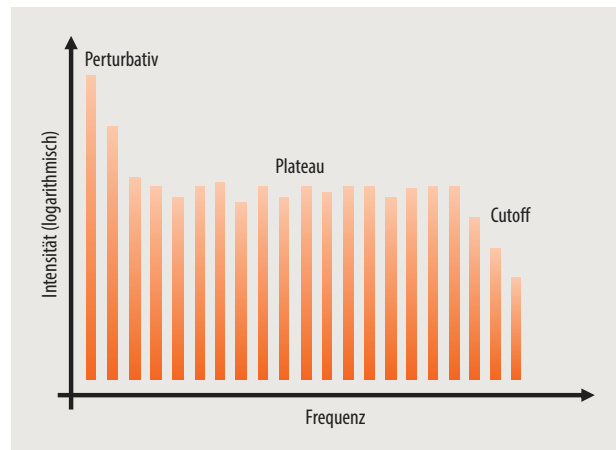


Abb. 2 Das typischen Spektrum mit hohen Harmonischen zeigt ein Plateau gefolgt von einem raschen Abfall (Cutoff).

kannt [8, 9], das sowohl die Erzeugung hoher Harmonischer als auch anderer Effekte (Strong-Field Physics) phänomenologisch erklären konnte (**Abb. 3**): Ist ein atomares Gas einem intensiven Laserfeld ausgesetzt, kann die Feldstärke das atomare Potential so stark deformieren, dass ein Elektron durch die entstehende Potentialbarriere tunneln kann (1). Wenn es dem Feld ausgesetzt ist, wird das Elektron zunächst vom Atom weg beschleunigt (2), kann aber zurückkehren und mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit rekombinieren (3). Dabei werden die kinetische und potentielle Energie des zurückkehrenden Elektrons als kurzer Lichtblitz im extrem ultravioletten Spektralbereich emittiert. Die Länge der emittierten Lichtblitze liegt im Attosekunden-Bereich und ist damit sogar kurz im Vergleich zur Periode des erzeugenden Laserfeldes. Der zuvor beschriebene Prozess wiederholt sich für jeden Halbzyklus des erzeugenden Feldes.

Das Spektrum eines einzelnen Attosekundenpulses ist kontinuierlich. Das ermöglichte später die Erzeugung isolierter Attosekundenpulse durch Ferenc Krausz. Die bis dahin beobachteten hohen Harmonischen resultieren dagegen aus der spektralen Interferenz der von aufeinanderfolgenden Halbzyklen emittierten Attosekundenpulse. Maciej Lewenstein, der zu der Zeit Postdoc unter

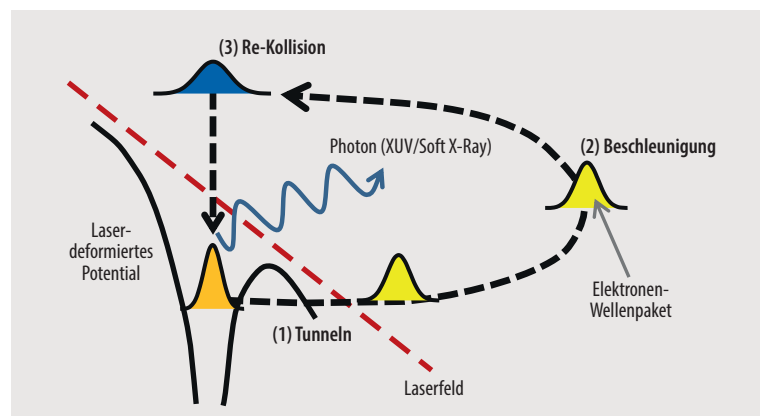


Abb. 3 Die Erzeugung von hohen Harmonischen und von Attosekundenpulsen lässt sich mit einem Drei-Stufen-Modell beschreiben (vgl. Haupttext).

Anne L'Huillier in Paris war, lieferte schließlich 1994 eine vollständig quantenmechanische Beschreibung der Erzeugung hoher Harmonischer [10]. Das auf der „Strong-Field Approximation“ (SFA) basierende Modell ist heute weit verbreitet in der Attosekundenphysik-Community.

Obwohl sich auch aufgrund des theoretischen Verständnisses die Anzeichen verdichteten, war ohne Messung der Beweis nicht erbracht, dass die Erzeugung hoher Harmonischer zur Emission von Attosekundenpulsen führt. Anne L'Huillier war Mitte der 1990er-Jahre an die Universität Lund in Schweden gewechselt. Dort entstand eine Reihe wichtiger Beiträge, etwa zum Verständnis der räumlichen und zeitlichen Kohärenz der hohen Harmonischen [11, 12]. In Lund war unter der Leitung von Sune Svanberg der erste kommerzielle Titan-Saphir-basierte Terawatt-Laser in Betrieb gegangen. Die Kombination aus zwei neuen Technologien, dem neuen Lasermaterial Titan-Saphir und der „Chirped Pulse Amplification“ (CPA), für deren Erfindung Donna Strickland und Gerard Mourou 2018 den Physik-Nobelpreis erhielten, ermöglichte deutlich kürzere Pulse und deutlich höhere Puls-Wiederholraten im Vergleich zur zuvor üblichen Neodym-Glas-Technologie. Zudem war die neue Technologie viel kompakter, sodass sich Femtosekunden-Laser auch im universitären Umfeld wie in Lund betreiben ließen. Das führte im Folgenden zur größeren Verbreitung von Forschung an hohen Harmonischen und dadurch auch zum späteren experimentellen Nachweis von isolierten Attosekundenpulsen wie auch -pulszügen. Interessant ist, dass sowohl Agostini als auch Krausz Ende der 1990er-Jahre Teil des Europäischen Forschungsnetzwerks „ATTO“ unter Leitung von Anne L'Huillier gewesen sind. Dieses hatte es sich zur Aufgabe gemacht, die Erzeugung und Charakterisierung von Attosekundenpulsen zu untersuchen. Das Netzwerk XTRA unter Leitung von Marc Vrakking setzte diese europäische Zusammenarbeit fort.



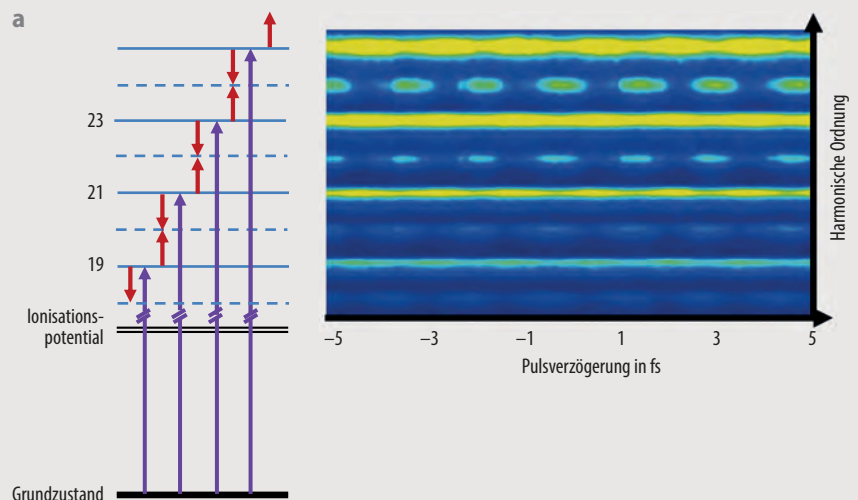
Pierre Agostini

Hochharmonisch zu Attosekundenpulsen

Im Annus Mirabilis 2001 der Attosekundenphysik ist schließlich Pierre Agostini und Ferenc Krausz erstmals die zeitliche Messung der Pulse aus der Erzeugung hoher Harmonischer gelungen. Der experimentelle Nachweis von Attosekunden-Lichtpulsen gilt gemeinhin als Geburt der Attosekundenphysik.

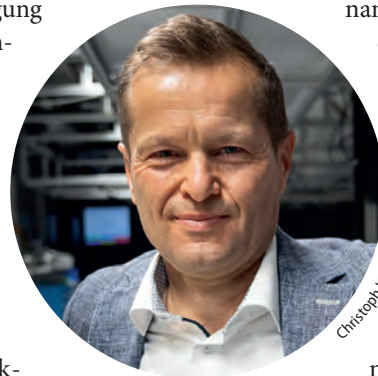
Pierre Agostini, der wie zuvor Anne L'Huillier am CEA-Saclay tätig war, hatte seine Arbeit zu Atomen in starken Laserfeldern fortgesetzt und erstmals experimentell nachgewiesen, dass die hohen Harmonischen kohärent gekoppelt sind, was in der Zeitdomäne einem Zug von Attosekundenpulsen entspricht [13]. Theoretischen Ideen aus der Gruppe von Alfred Maquet folgend [14] gelang dies in enger Kollaboration mit Harm-Geert Muller vom Amolf-Institut in Amsterdam, der die sogenannte RABBITT-Methode (Resonant Attosecond Beating by Interference of Two-Photon Transitions) mitentwickelt hat. Diese wird mittlerweile oft nur mit RABBIT abgekürzt, in Analogie zu den Tiernamen für viele andere Methoden zur Pulsdauermessung, wie FROG oder SPIDER. RABBIT beruht auf der Messung einer Interferenz im Photoelektronen-Spektrum (**Abb. 4a**). Hierbei werden die Harmonischen im extrem ultravioletten Spektralbereich (XUV) mit der Fundamentalen des Lasers im Infraroten (IR) überlagert und die mithilfe eines Detektionsgases erzeugten Photoelektronen aufgezeichnet. Abgesehen von den hohen Harmonischen selbst entstehen dabei jeweils zwei Pfade, um Seitenbänder zwischen den Harmonischen zu erzeugen. Deren Interferenz als Funktion der Verzögerung zwischen den XUV- und IR-Pulsen ermöglicht es, die Phasenbeziehung zwischen den Harmonischen zu messen und damit den Attosekundenpulszug zu rekonstruieren. Auf diese Weise gelang es Pierre Agostini

Abb. 4 Zu den Methoden der Attosekundenphysik gehört RABBIT (a), bei der Interferenz in den Seitenbändern die Information über die Phasenrelation aufeinanderfolgender Harmonischer enthält. So lässt sich der zeitliche Pulszug rekonstruieren. Bei der Attosekunden-Streak-Kamera (b) übt das Infrarot-Feld auf ein emittiertes Elektron eine zusätzliche Kraft aus, die zu einer Beschleunigung und damit Energieänderung der emittierten Elektronen als Funktion der Zeitverzögerung zwischen XUV- und IR-Pulsen führt.



und Kollegen, Pulszüge mit einer individuellen Pulsdauer von 250 Attosekunden experimentell zu demonstrieren. Nach seiner Pensionierung vom CEA-Saclay im Jahr 2002 wurde Pierre Agostini Professor an der Ohio State University und arbeitete im Folgenden dort über viele Jahre eng mit Louis DiMauro zusammen. Seit 2017 ist Pierre Agostini emeritiert.

Ferenc Krausz promovierte 1991 an der TU Wien, wo er bis 2004 forschte. Bereits in den 1990er-Jahren hatte er Schlüsseltechnologien wie gechirpte dielektrische Spiegel entwickelt, die heute wichtige Standards der Lasertechnik darstellen. Mit der Verkürzung der Treiberpulse war es Ferenc Krausz und seinem Team bereits 1997 gelungen, Röntgenlicht im Wasserfenster zu erzeugen [15]. Im gleichen Jahr gab es den theoretischen Vorschlag, dass sehr kurze Treiberpulse zur Erzeugung von isolierten Attosekundenpulsen führen können [16]. Dies griff Krausz auf, um mit seinem Team 2001 erstmals isolierte Attosekundenpulse nachzuweisen [17]. Dafür setzte er nur wenige Femtosekunden dauernde Lichtpulse ein, um hohe Harmonische zu erzeugen. Ein spektraler Filter nahe dem Cutoff des XUV-Spektrums konnte die für diesen Teil des Spektrums verantwortliche Rückstreuung von Elektronen auf genau einen Zeitpunkt begrenzen. So gelang es, einen isolierten Attosekundenpuls mit 650 as zu erzeugen [17]. Für den zeitlichen Nachweis kam eine Technik zum Einsatz, die schließlich als Attosekunden-Streak-Kamera bekannt wurde (**Abb. 4b**) [18, 19]. Dabei übt das IR-Feld auf ein XUV-emittiertes Elektron eine zusätzliche Kraft aus, die zu einer Beschleunigung und damit Energieänderung der emittierten Elektronen als Funktion der Zeitverzögerung zwischen XUV- und IR-Pulsen führt. In der Arbeit von 2001 geschah dies noch mit senkrecht zueinander polarisierten Pulsen. Allerdings wird bereits auf zukünftige Arbeiten mit



Ferenc Krausz

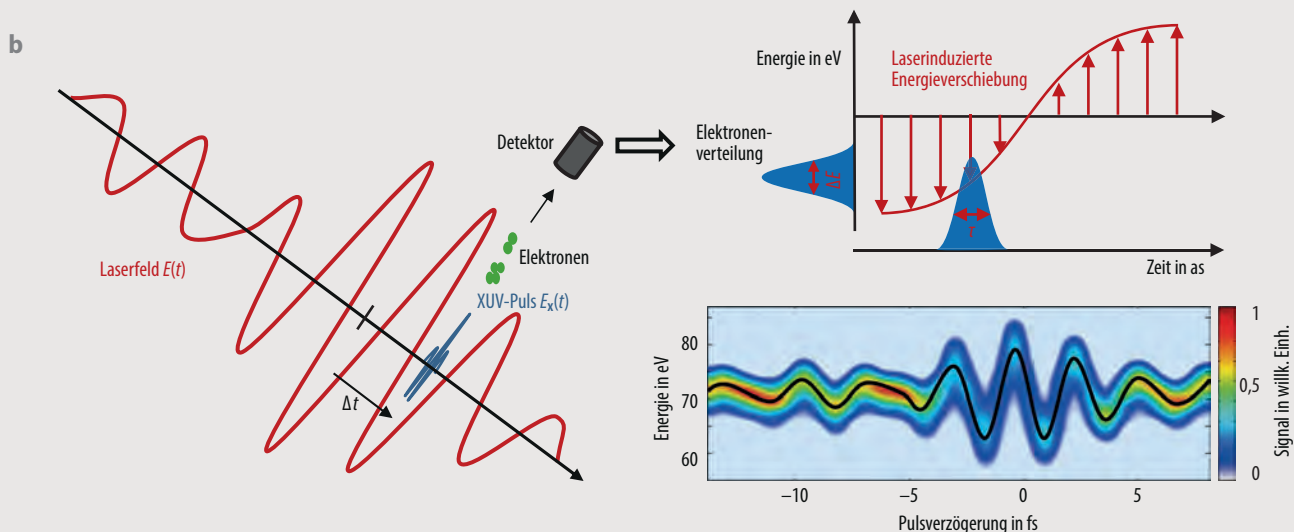
Christoph Hohmann/MCOST

paralleler Polarisation verwiesen, die mittlerweile die Anwendungen dominiert.

Bereits ein Jahr nach der ersten Messung eines isolierten Attosekundenpulses wurden diese erstmals eingesetzt, um ultraschnelle elektronische Prozesse zu untersuchen. Zusammen mit ihrem engen Kollaborationspartner Markus Drescher konnte die Forschungsgruppe um Ferenc Krausz die Lebensdauer des Auger-Prozesses nach der Ionisation aus der 3d-Schale von Krypton durch einen Attosekundenpuls bestimmen [20]. Kurz darauf gelang es, die Wellenform des IR-Lichtes mit der Attosekunden-Streak-Kamera abzubilden [21]. Hierfür war die Stabilisierung der Trägerwellen-Einhüllenden-Phase (carrier-envelope phase) und damit die Wellenform der nur wenige Femtosekunden dauernden IR-Pulse ein wichtiger Bestandteil. Dazu kam die sogenannte Frequenzkamm-Technik zum Einsatz, für die John Hall und Theodor Hänsch 2005 den Physik-Nobelpreis erhielten. Die Stabilisierung der Wellenform der Pulse hat seitdem auch die Kontrolle von Elektronen auf Attosekundenzeitskalen ermöglicht. Dies ist unter anderem von Bedeutung, um Ladungen in Molekülen zu lokalisieren und zu transferieren [22] oder auch um Ströme und Übergänge in Festkörpern zu kontrollieren (Lichtwellen-Elektronik) [23]. Erwähnung verdient auch, dass Paul Corkum an der Entwicklung der Attosekunden-Streak-Kamera ganz wesentlich beteiligt war. Für seine Beiträge zur Attosekundenphysik erhielt er gemeinsam mit Anne L'Huillier und Ferenc Krausz kürzlich den Wolf-Preis sowie den Frontiers of Knowledge Award.

Kurze Pulse, lange Wirkung

Die Nobelpreisträger haben mit ihren experimentellen Durchbrüchen die Attosekundenphysik begründet. Sowohl die RABBIT-Technik als auch die Attosekunden-Streak-Kamera sind mittlerweile Gold-Standards bei der Erfor-



schung der Dynamik von Elektronen und liefern wesentliche Einblicke in eine neue Welt des Mikrokosmos. Die Entwicklungen seit 2001 waren schlicht atemberaubend. Die Attosekundenphysik hat sich zur Attosekundenwissenschaft ausgeweitet, unter anderem mit Anwendungen in der fundamentalen Metrologie wie der Messung von Zeitverzögerungen in der Photoemission von Atomen, Molekülen und Oberflächen [24 – 27], der Atto-Chemie [22, 28], ultraschneller Lichtwellen-Elektronik [29] sowie der diffraktiven Bildgebung für beispielsweise die Halbleiterstruktur-Metrologie [30]. Als besonders zukunftsweisend gilt das sogenannte molekulare Fingerprinting [31]. Diese Methode beruht auf der präzisen Messung der transmittierten Lichtwelle durch eine Blutprobe und verspricht, Krebs und andere Krankheiten im Frühstadium diagnostizieren zu können. Ferenc Krausz widmet sich dieser Anwendung mit höchster Leidenschaft und hat zu diesem Zweck kürzlich ein Zentrum (Center for Molecular Fingerprinting, CMF) in Ungarn gegründet.

Die Entwicklungen in der Attosekundenphysik waren stets ganz wesentlich mit Entwicklungen in der Lasertechnologie verknüpft. Das Feld hat zu Beginn stark von der Titan:Saphir-Technologie profitiert und durch Ferenc Krausz und andere, wie Ursula Keller, Margaret Murnane und Henry Kapteyn, stets zur weiteren Entwicklung der Lasertechnologie beigetragen. Dies hat Einfluss weit über die Grenzen der Attosekundencommunity hinaus ausgeübt. Diese treibt derzeit die Entwicklung von Kurzpulssystemen basierend auf neuen Technologien für hohe Durchschnitts- und Spitzenleistungen voran sowie deren Realisierung im mittleren Infrarot. Aufgrund der quadratischen Skalierung des Cutoffs der hohen Harmonischen mit der Wellenlänge sind letztere Systeme vor allem für die Erzeugung von Attosekundenpulsen im weichen Röntgenbereich interessant. Dies verspricht neue Anwendungen in der Chemie, Biologie und Medizin sowie für die Materialwissenschaften.

Wichtige Beiträge, um die Attosekundenspektroskopie weiterzuentwickeln, liefern die European Light Infrastructure (ELI) mit ELI-ALPS im ungarischen Szeged und Freielektronen-Laser (FEL), mit denen sich Attosekundenpulse für Nutzer weltweit erzeugen lassen. Mit FELs hat sich eine neue Möglichkeit erschlossen, Attosekundenexperimente durchzuführen, ohne hohe Harmonische zu erzeugen. Am FEL FERMI in Italien lassen sich Attosekundenpulse im XUV erzeugen und am FEL LCLS in den USA isolierte Attosekundenpulse im Röntgenbereich. Der erst vor kurzem in Betrieb genommene FEL LCLS-II verspricht, bald Attosekundenpulse mit Leistungen von bis zu Terawatt und Wiederholraten im MHz-Bereich zu erzeugen. Damit wird sich das Tor zur nichtlinearen Spektroskopie (wie Pump-Probe-Spektroskopie, Raman-Spektroskopie etc.) im Röntgenbereich öffnen. Das zeigt eindrucksvoll, dass wir aus den Kinderschuhen der Attosekundenphysik herausgewachsen, aber längst noch nicht ausgewachsen sind.

Literatur

- [1] P. Agostini et al., Phys. Rev. Lett. **42**, 1127 (1979)
- [2] A. McPherson et al., J. Opt. Soc. Am. B **4**, 595 (1987)
- [3] M. Ferray et al., J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **21**, L31 (1988)
- [4] Gy. Farkas und Cs. Tóth, Phys. Lett. A **168**, 447 (1992)
- [5] S. E. Harris, J. J. Macklin und T. W. Hänsch, Opt. Commun. **100**, 487 (1993)
- [6] A. L’Huillier, K. J. Schafer und K. C. Kulander, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **24**, 3315 (1991)
- [7] J. L. Krause, K. J. Schafer und K. C. Kulander, Phys. Rev. Lett. **68**, 3535 (1992)
- [8] K. J. Schafer et al., Phys. Rev. Lett. **70**, 1599 (1993)
- [9] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993)
- [10] M. Lewenstein et al., Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994)
- [11] P. Antoine, A. L’Huillier und M. Lewenstein, Phys. Rev. Lett. **77**, 1234 (1996)
- [12] M. Bellini et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 297 (1998)
- [13] P. M. Paul et al., Science **292**, 1689 (2001)
- [14] V. Veniard, R. Taïeb und A. Maquet, Phys. Rev. A **54**, 721 (1996)
- [15] Ch. Spielmann et al., Science **278**, 661 (1997)
- [16] I. P. Christov, M. M. Murnane und H. C. Kapteyn, Phys. Rev. Lett. **78**, 1251 (1997)
- [17] M. Hentschel et al., Nature **414**, 509 (2001)
- [18] J. Itatani et al., Phys. Rev. Lett. **88**, 173903 (2002)
- [19] R. Kienberger et al., Nature **427**, 817 (2004)
- [20] M. Drescher et al., Nature **419**, 803 (2002)
- [21] E. Goulielmakis et al., Science **317**, 769 (2007)
- [22] M. F. Kling et al., Science **312**, 246 (2006)
- [23] A. Schiffrin et al., Nature **493**, 70 (2013)
- [24] A. Cavalieri et al., Nature **449**, 1029 (2007)
- [25] M. Schultze et al., Science **328**, 1658 (2010)
- [26] F. Calegari et al., Nature **336**, 346 (2014)
- [27] M. Isinger et al., Science **358**, 893 (2017)
- [28] G. Sansone et al., Nature **465**, 763 (2010)
- [29] F. Krausz und M. Stockman, Nat. Photonics **8**, 205 (2014)
- [30] R. L. Sandberg et al., Phys. Rev. Lett. **99**, 098103 (2007)
- [31] I. Pupeza et al., Nature **577**, 52 (2020)

Die Autoren



Cord Arnold (FV Kurzzeit- und angewandte Laserphysik, FV Quantenoptik und Photonik) promovierte 2007 am Laser Zentrum Hannover. Nach einer Station am Laboratoire d’Optique Appliquée in Paris wurde er 2011 Assistant Professor im schwedischen Lund, wo er seit 2015 Associate Professor

für Laserphysik ist. Er erzeugt und charakterisiert Femto- und Attosekundenpulse und wendet sie in zeitaufgelösten Experimenten an. Er hat die Firma Sphere Ultrafast Photonics in Porto, Portugal, mitgegründet.

Matthias Kling (FV Kurzzeit- und angewandte Laserphysik) promovierte 2002 an der U Göttingen auf dem Gebiet der Femto-Chemie. Nach Postdoc-Aufenthalten an der UC Berkeley und am AMOLF in Amsterdam leitete er ab 2007 eine Emmy Noether-Nachwuchsgruppe und später eine Heisenberg-Gruppe zur Attosekundenphysik in Molekülen und Nanostrukturen. Ab 2013 war er Professor für Physik an der LMU München und leitet dort und am MPI für Quantenoptik eine der assoziierten Gruppen in Attoworld. Seit 2021 ist er Professor für Photonik an der Stanford University und wissenschaftlicher Leiter der Linac Coherent Light Source am SLAC National Accelerator Laboratory.



Prof. Dr. Cord Arnold, Lund University, Box 117, 221 00 Lund, Schweden und **Prof. Dr. Matthias Kling**, Stanford University, Stanford, California 94305