

Die Lichtquelle für die Superzeitlupenaufnahme von Molekülen

ROBERT MOSHAMMER | ARTEM RUDENKO | JOACHIM ULLRICH


Dieses Dokument ist eine Ergänzung zum Artikel „Chemische Reaktionen in Superzeitlupe“ in **Physik in unserer Zeit**, 44. Jahrgang 2013, Nr. 1, S. 20.

Der Freie-Elektronen-Laser FLASH in Hamburg

Freie-Elektronen-Laser (FEL) werden auch als Synchrotrone der neuesten, vierten Generation bezeichnet, denn beide Techniken beruhen auf der Erzeugung von Licht durch beschleunigte Ladungen, der Synchrotronstrahlung. Dabei schießt man ein Paket von bis zu 10^{10} Elektronen mit annähernd Lichtgeschwindigkeit durch eine Anordnung alternierender Magnetfelder. Dieser sogenannte Undulator zwingt die Elektronen auf eine Schlangenlinienbahn: Sie werden ständig hin und her beschleunigt und emittieren dadurch Licht.

Es gibt allerdings zwei entscheidende Unterschiede zwischen einem Synchrotron und einem FEL. Zum einen ist das Elektronenpaket beim FEL wesentlich kürzer, einige zehn bis hundert Femtosekunden im Vergleich zu vielen Pikosekunden im Synchrotron. Zum anderen ist der FEL-Undulator mit 30 bis über 100 m deutlich länger als ein typischerweise 2 bis 3 m langer Synchrotron-Undulator.

Das hat dramatische Auswirkungen. Im sehr langen Undulator des FEL kommt es zu einer Wechselwirkung der Elektronen mit ihrem eigenen Licht, also der Strahlung, die sie selbst kurz zuvor im Undulator erzeugt haben. Dadurch wird dem Elektronenpaket eine Mikrostruktur aufgezwungen, und große Teile des Pakets werden auf ein Raumgebiet zusammengedrückt, das kleiner ist als die Lichtwellenlänge. Damit strahlen die Elektronen kohärent. Die kurze Länge des Pakets verstärkt diesen Effekt noch.



Außerdem, und das ist der entscheidende Punkt, steigt die Leistung des emittierten Lichts nicht nur wie bei einem normalen Synchrotron linear mit der Anzahl der Elektronen, sondern wegen der Kohärenz sogar quadratisch. Damit stellen FEL alle bisherigen EUV- und Röntgen-Strahlungsquellen sprichwörtlich in den Schatten. Sie erzeugen Lichtpulse, die mehr als eine Milliarde Mal intensiver sind als die Pulse selbst der besten Synchrotrone – und das bei bis zu Zehntausend mal kürzerer Belichtungszeit.

Weltweit erstmals wurde diese Verfahren für die Erzeugung von kurzweiliger EUV-Strahlung am Freie-Elektronen-Laser FLASH in Hamburg in die Realität umgesetzt. Dort werden Elektronenpakete aus einem Linearbeschleuniger mit Energien zwischen 0,3 und 1,0 GeV durch einen rund 30 m langen Undulator geschossen. Sie erzeugen Laserstrahlung mit einer Photonenenergie, die im Bereich von 25 bis 200 eV bei Pulslängen von 20 bis 100 fs liegt.

Wie bei allen neueren FEL basiert auch beim FLASH die Lichterzeugung, das sogenannte Lasing, auf einer Verstärkung der im Undulator anfangs spontan erzeugten Strahlung. Schließlich muss zunächst einmal eine gewisse Menge an Strahlung erzeugt werden, um die eben diskutierte Rückkopplung zwischen Elektronenpaket und Lichtwelle in Gang zu setzen. Man spricht in diesem Zusammenhang vom SASE-Verfahren (Self-Amplified Spontaneous Emission). Da der Verstärkungsprozess aus dem Rauschen heraus startet, führt dies von Puls zu Puls immer zur statistischen Schwankung von Intensität und Pulsform. Im Mittel beträgt die Leistung in einem einzigen Lichtpuls, von denen FLASH in naher Zukunft bis zu 30 000/s erzeugen kann, etwa ein Gigawatt.

Messung der FEL-Pulslänge mittels Autokorrelation

Für die Durchführung von zeitaufgelösten Experimenten ist es natürlich entscheidend, die Dauer und Form der Lichtpulse zu kennen. Insbesondere für EUV- und Röntgen-FEL-Lichtquellen ist deren Messung allerdings ein nichttriviales Unterfangen, denn kein Detektor der Welt und keine Elektronik ist schnell genug, um die Pulsform direkt messen zu können. Wie kann man also Information über die Form der Lichtpulse erhalten? Einen ersten, guten Anhaltspunkt liefern umfangreiche Simulations- und Modellrechnungen zur Lichterzeugung im FEL, dessen Funktionsweise man mittlerweile sehr gut versteht.

Wichtig ist in diesem Zusammenhang die Tatsache, dass aufgrund der statistischen Natur der Lichterzeugung (SASE) kein Puls dem anderen gleicht. Innerhalb gewisser Grenzen ändern sich bei jedem Schuss die Intensität, Pulsform und Länge. Mehr noch, der zeitliche Verlauf der Lichtpulse ist alles andere als eine glatte, gleichmäßige Funktion. Vielmehr setzt sich jeder einzelne Puls aus mehreren kurzen Intensitätsspitzen zusammen, deren Höhe, Breite und zeitliche Abfolge ebenfalls von Schuss zu Schuss innerhalb eines bestimmten Bereiches variiert. Diese Details anhand von Simulationsrechnungen vorherzusagen ist zwar möglich, aber mit großen Unsicherheiten behaftet. Es hilft also nichts, um zuverlässige

Aussagen über die Form der FEL-Pulse treffen zu können, muss man sie mit einem geeigneten Verfahren experimentell bestimmen.

In enger Anlehnung an Methoden, die zur Vermessung von Laserpulsen im sichtbaren Spektrum entwickelt wurden, haben wir eine Intensitäts-Autokorrelationsmessung am FEL durchgeführt. Die Grundidee ist die Folgende: Man wählt einen Prozess, der nur dann stattfindet, wenn mehrere Photonen gleichzeitig von einem bestimmten Medium absorbiert werden. Man spricht von einem nichtlinearen Prozess, weil sein Beitrag überproportional stark mit zunehmender Lichtintensität ansteigt. Führt man nun eine Pump-Probe-Messung durch und trägt die Stärke des entsprechenden Messsignals als Funktion der Verzögerungszeit auf, so erhält man eine Überhöhung genau dann, wenn die Intensität besonders groß ist, also beide Pulse zeitlich überlappen. Aus der Breite der Verteilung kann man die Pulslänge bestimmen – sowie in gewissem Rahmen Aussagen über die Pulsform treffen.

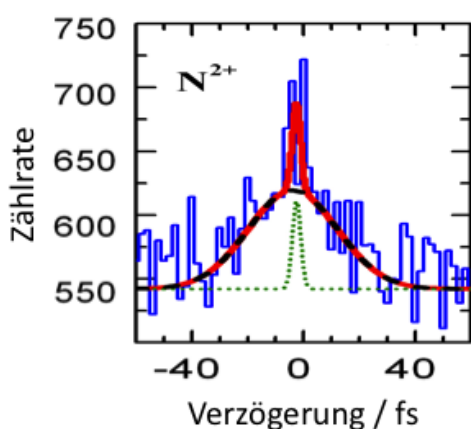



Abb. 1 *Pulslängenmessung über Intensitäts-Autokorrelation mit N_2 -Molekülen. Aufgetragen ist die Ausbeute von N^{2+} -Fragmenten, die aus der vierfachen Ionisation von N_2 -Molekülen stammen, als Funktion der Zeitverzögerung zwischen den beiden Pulsen (Pump - Probe). Dieser Prozess, der die gleichzeitige Absorption von vier Photonen erfordert, tritt mit besonders hoher Wahrscheinlichkeit dann auf wenn die Intensität sehr hoch ist bzw. die beiden Pulse zeitlich überlappen (Zeitverzögerung von Null). Da sich jeder FEL-Puls aus mehreren kurzen Intensitätsspitzen zusammensetzt, spiegelt der Form des Autokorrelationssignals sowohl die mittlere Länge der FEL Pulse (ca. 40 fs, schwarze durchgezogene Linie), als auch die Breite der kurzen Intensitätsspitzen (die so genannte Kohärenzlänge, ca. 4-5 fs, grüne gestrichelte Linie) wieder.*

Als nichtlinearen Prozess haben wir uns die vierfache Ionisation von molekularem Stickstoff (N_2) ausgesucht. Um diesen Ladungszustand zu erreichen, müssen bei einer Photonenergie von 45 eV mindestens vier Photonen gleichzeitig absorbiert werden. Bei der Messung am FLASH haben wir also die Häufigkeit für das Auftreten von N^{2+} - N^{2+} -Paaren (die hohe Ladung führt immer zur Fragmentation des Moleküls) in Abhängigkeit von der Pump-Probe-Verzögerungszeit aufgezeichnet (Abbildung 1). Deutlich zu erkennen ist ein zeitlich schmales Maximum bei idealem Überlapp ($t = 0$) der beiden Pulse, welches wiederum auf einer breiteren Gauß förmigen Verteilung sitzt. Aus den Breiten dieser beiden Strukturen können wir wichtige Parameter der FEL-Pulse bestimmen [1].



Für die mittlere Pulsdauer erhalten wir einen Wert von 40 ± 10 fs (Halbwertsbreite), dies folgt aus der Gauß förmigen Verteilung, während wir aus dem schmalen Maximum die Dauer der Intensitätsspitzen im Puls ableiten können. Diese sind im Mittel 4 ± 1 fs (Halbwertsbreite) lang. Damit wissen wir nun zum einen, wie breit die über viele Pulse gemittelte Einhüllende des Intensitätsverlaufs ist, und zum anderen erfahren wir etwas über die Unterstruktur der FEL-Lichtpulse.

Literatur

[1] Y. Jiang et al., Phys. Rev. A **2010**, 82, 041403.