

Atoom maakt hologram van zichzelf

Elektronen zijn de spil in elke chemische reactie en daarom willen we hun beweging graag kunnen meten. Dit is echter niet eenvoudig: elektronen bewegen op een tijdschaal van attoseconden en het vinden van een techniek met een 'sluittijd' van attoseconden is een behoorlijke uitdaging. Met de komst van de attoseconde laser is hier verandering in gebracht en sinds enkele jaren wordt met deze techniek de dynamica in kleine moleculen bestudeerd [1]. Ymkje Huismans en Marc Vrakking

Recent hebben we een nieuwe techniek ontwikkeld die de beweging van elektronen vastlegt op een attoseconde tijdschaal, de foto-elektronholografie [2]. Met deze methode kan een hologram worden gemaakt van een atoom gebruikmakend van elektronen uit het atoom zelf. Normaal gesproken wordt in een hologram alleen informatie over de vorm van een object opgeslagen, maar in foto-elektronholografie wordt ook tijdinformatie opgeslagen, met andere woorden: het is een soort 4D-hologram. Een groot voordeel van deze techniek is dat deze geschikt is voor systemen met een lage ionisatiepotentiaal, zoals grotere moleculen die een biologische relevantie hebben.

Holografie

In holografie wordt de vorm van een object opgeslagen in een interferentiepatroon dat we een hologram noemen. Dit wordt mogelijk gemaakt door het golfkarakter van de elektronen of fotonen die in de meting gebruikt worden. Het holografieconcept werd in 1947 geïntroduceerd door Gabor en kent tegenwoordig vele toepassingen, waaronder het bekende 'regenboogplaatje' in de creditcard. In figuur 1 is schematisch weergegeven hoe holografie werkt.

Om een hologram te kunnen maken moet aan een aantal voorwaarden worden voldaan. Ten eerste moet er

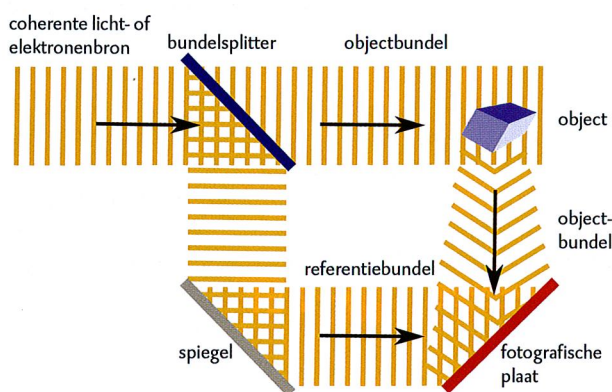
een coherente bron zijn van elektronen of fotonen. Ten tweede moet deze gesplitst worden in een 'objectgolf' die aan het te bestuderen voorwerp verstrooit en een 'referentiegolf' die dit niet doet. En ten derde moeten de beide golven tegelijkertijd op een detector vallen waar ze met elkaar kunnen interfereren. In onze nieuwe experimenten is het door middel van de zogenaamde 'tunnelionisatie' gelukt om aan de eerste twee voorwaarden te voldoen. Met het gebruik van een tweedimensionale plaatsgevoelige detector die de interferentie tussen de beide golven, en dus het hologram, zichtbaar maakt is aan de derde voorwaarde voldaan.

Tunnelionisatie

Wanneer er een sterk elektrisch veld aanwezig is, wordt een elektron in een atoom of molecuul zowel aange-

trokken door de positieve kern van het atoom als beïnvloed door het externe veld. Hierdoor verandert de totale potentiaal die het elektron ervaart. In figuur 2 wordt schematisch weergegeven hoe in de richting van het externe veld de potentiaal als het ware naar beneden wordt gedrukt. Hierdoor ontstaat de mogelijkheid voor het elektron om via quantummechanische tunnelionisatie vrij te komen. Als we nu een oscillerend elektrisch veld gebruiken, zoals bij een laser, dan verandert de totale potentiaal periodiek (zie figuur 3). De kans om te tunnelen is het grootst als het veld het sterkst is. Dit gebeurt twee keer per laserperiode, één keer de ene kant op, één keer de andere kant op. Zo hebben we een coherente elektronenbron gecreëerd en is aan de eerste voorwaarde voldaan.

Wanneer het elektron vrij is, wordt het nog steeds aangetrokken door het



Figuur 1 Concept van holografie.

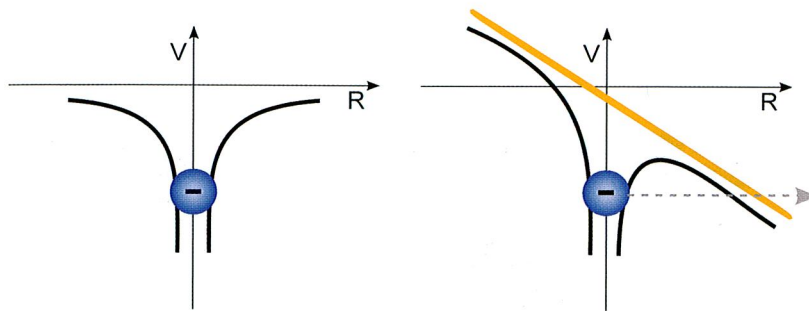
oscillerende laserveld en beweegt het van het atoom af en er naar toe. Afhankelijk van de richting waarin het elektron vrijkomt, volgt het elektron een ander pad. Of het elektron komt vrij in de richting van de laserpolarisatie en wordt door de laser teruggebracht naar het ion waar het botst (rode lijn in figuur 4), of het elektron komt vrij met een snelheidscomponent in de richting loodrecht op de laserpolarisatie en maakt een wijde boog om het ion heen (blauwe lijn). Hiermee is aan de tweede conditie voldaan; elektronen die botsen met het ion vormen de objectgolf en elektronen die een wijde boog maken, vormen de referentie-golf. De object- en referentie-golf vormen op een tweedimensionale detector via interferentie een hologram.

Het hologram in de praktijk

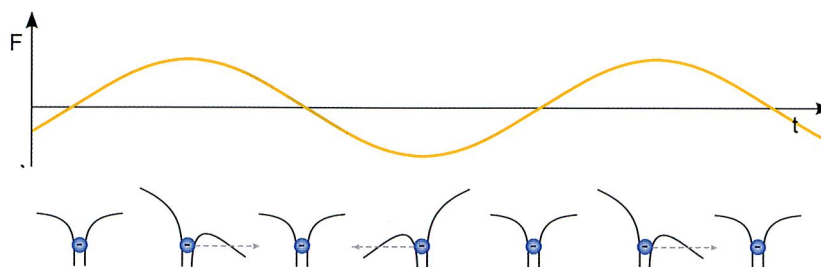
Om foto-elektronholografie aan te tonen, hebben we een experiment aan xenon gedaan. Omdat er al veel experimenten met xenon zijn gedaan, is xenon erg geschikt als model om nieuwe methoden te testen.

Het is niet mogelijk om met een willekeurige laser een foto-elektronhologram te maken. Ten eerste moet het elektron kunnen tunnelioniseren. Hiervoor is niet alleen een sterk laserveld nodig, maar ook een lage frequentie. In figuur 3 zien we hoe het laserveld continu de totale potentiaal aanpast. Wanneer de frequentie van de laser hoog is, verandert de totale potentiaal snel en daarmee de tunnelwaarschijnlijkheid. Terwijl het elektron aan het tunnelen is, wisselt het veld van teken en wordt de tunnel 'gesloten'. Om dit te voorkomen is het gunstig om met een lage frequentie en dus een lange golflengte te werken. Een combinatie van een sterk veld en een lange golflengte komt niet voor in standaard lasers, maar wel in de nieuwe vrije-elektronenlaser van Rijnhuizen, de FELICE-laser (*Free Electron Laser for IntraCavity Experiments*).

De experimentele opstelling is te zien in figuur 5. Gesynchroniseerd met de laserpulsen laat een gepulste klep xenon het vacuümapparaat in. Omdat het elektron in de grondtoestand veel te diep gebonden is (12,13eV) om te tunnelioniseren met 7 μ m-licht (0,18eV per foton), hebben we xenon eerst in een metastabiele, aangeslagen toestand gebracht door de atomen met elektronen uit een filament te la-



Figuur 2 De linker figuur geeft de potentiële energie aan van een elektron in een Coulombtoestand. Hoe verder het elektron van de kern verwijderd is, hoe groter R is en hoe lager de bindingsenergie. Wanneer er een elektrisch veld wordt aangelegd, verandert de totale potentiaal die het elektron ervaart. Dit is weergegeven in de rechter figuur, waar de gele lijn een indicatie geeft van hoe het elektrisch veld de potentiaal verandert. Nu ontstaat er de mogelijkheid voor het elektron om te tunnelen, dit is aangegeven met de grijs gestreepte pijl.



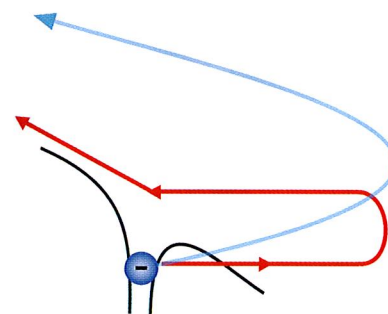
Figuur 3 In de grafiek is aangegeven hoe het elektrisch veld van de laser zich ontwikkelt in de tijd. Hieronder staat hoe de totale potentiaal verandert onder invloed van het veld. Twee keer per laserperiode ontstaat er de mogelijkheid om te tunnelen.

ten botsen. Vervolgens kruist de metastabiele xenonbundel het FELICE-laserlicht en worden de xenonatomen geïoniseerd. De elektronen worden met een zogenaamde Velocity-Map-Imaging-spectrometer (VMI) gedetecteerd. Deze meet de snelheid van de elektronen, dus elk punt op de detector geeft een unieke snelheid weer. Omdat de massa van alle elektronen gelijk is, bepaalt de snelheid ook de impuls van het elektron ($p = mv$). Het resultaat dat op de detector terecht komt, wordt hierom een impulskaart (momentum map) genoemd.

In figuur 6a is het resultaat van deze meting te zien. Op de verticale as staat de impuls in de richting van de laserpolarisatie, op de horizontale as staat de impuls in de richting loodrecht op de laserpolarisatie. Het eerste dat opvalt, is dat de meeste elektronen langs de laserpolarisatieas worden gedetecteerd. Dit komt omdat de elektronen langs die kant door de laser als het ware uit het atoom worden getrokken. Maar we zien ook een duidelijk interferentiepatroon, dat in de linker helft gemarkeerd is door zwarte stippellijnen. Dit is het hologram.

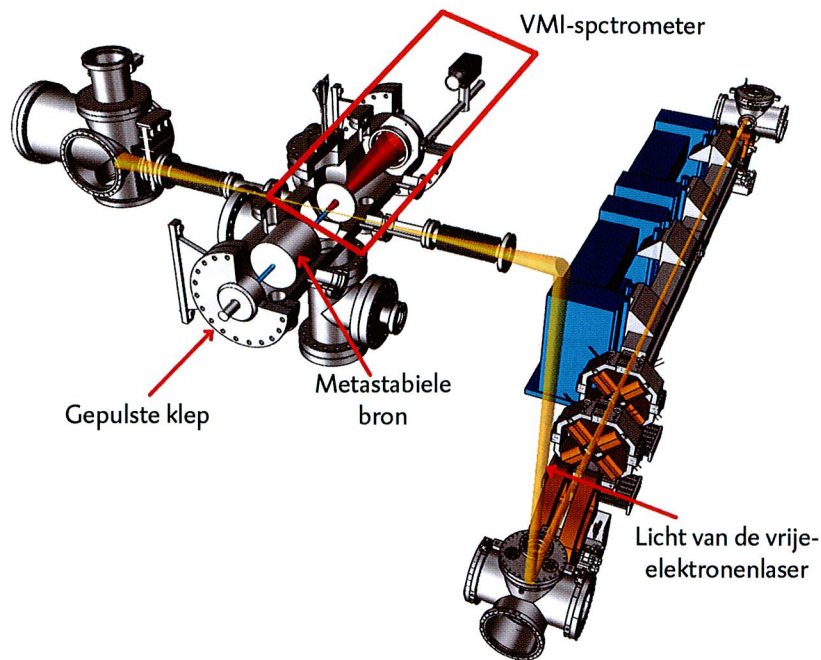
Het hologram in de theorie

Om aan te tonen dat dit echt een ho-

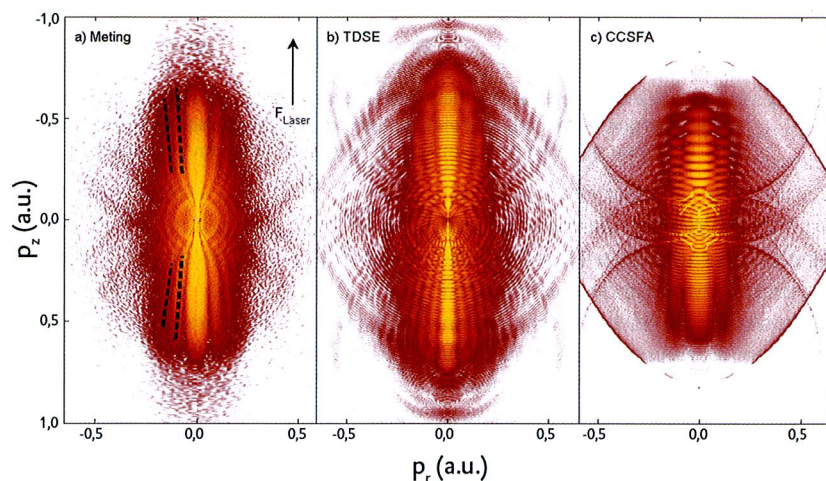


Figuur 4 Indicatie van de paden die een elektron kan volgen na ionisatie (zie tekst).

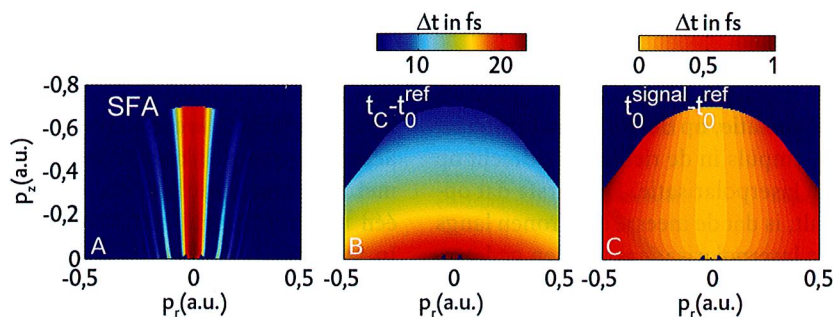
logram is hebben we verschillende berekeningen gedaan. In de eerste berekening (TDSE-berekening = Time-Dependent-Schrödinger-Equation-berekening), hebben we bijna exact de Schrödingervergelijking opgelost, met als enige aanname dat er maar één elektron tegelijkertijd actief is. In figuur 6b is te zien dat deze berekening goed overeenkomt met de meting, vooral het interferentiepatroon komt kwantitatief goed overeen. Omdat met deze berekening lastig te achterhalen is welk pad elektronen volgen om op een bepaald punt uit te komen, hebben we ook een semi-classieke berekening uitgevoerd, de Coulomb-Corrected-Strong-Field-Approximation-berekening (CCSFA). Deze



Figuur 5 Experimentele opstelling.



Figuur 6 Bovenstaande figuren zijn momentum maps, waarin elk punt in het figuur een unieke impuls aanduidt van een elektron. p_z is de impuls parallel aan de laserpolarisatie F_{laser} en p_r is de impuls loodrecht daarop. a) Meting aan metastabiel xenon, geïoniseerd met $7\mu\text{m}$ -laserlicht. Zwarte stippellijnen markeren het holografische interferentiepatroon. b) TDSE-berekening (zie tekst). c) CCSFA-berekening (zie tekst).



Figuur 7 a) Het resultaat van een semi-klassieke berekening. Alleen de bovenste helft van de momentum map wordt getoond. b) Het verschil tussen de tijd van botsen (t_c) en de tijd waarop het elektron gaat tunnelen (t_0). Dit is een pomp-probe-experiment dat informatie geeft over de dynamica van het ion op een femtoseconde tijdschaal. c) Het verschil tussen het moment van tunnelen van het 'objectelektron', t_0^{signal} en het 'referentie-elektron', t_0^{ref} . Dit tijdsverschil geeft informatie over de ionisatiedynamica van de elektronen op een attosecondetijdschaal.

methode beschouwt de elektronen als geladen deeltjes in een gecombineerd laser- en Coulombveld. Om ervoor te zorgen dat het interferentiepatroon gereproduceerd kan worden, wordt ook de fase van het elektron bijgehouden. Het resultaat is te zien in figuur 6c. Ook deze berekening komt goed overeen met de meting. Nu kunnen we achterhalen welke paden de elektronen volgen die verantwoordelijk zijn voor het interferentiepatroon. Het blijkt dat inderdaad het ene elektron direct naar de detector gaat, terwijl het andere elektron eerst botst. Het is dus echt een hologram.

Tijdinformatie

Uit een andere semi-klassieke berekening blijkt dat het hologram ook tijdinformatie bevat. De ionisatie en het botsen van het elektron met het ion kunnen namelijk als een soort 'pomp-probe'-experiment worden gezien. In een pomp-probe-experiment wordt eerst een reactie aangezet door de pomp en op een later tijdstip gemeten door een probe. Meestal worden deze experimenten gedaan met twee lasers, waarbij de eerste laser een reactie start en de tweede laser meet hoe het systeem er na een zekere tijd uitziet. Door de tijd tussen de pomp en de probe te variëren kan de beweging van een bepaald proces in kaart worden gebracht.

In dit experiment is de pomp de ionisatiestap, waarmee bepaalde dynamica kan worden aangezet, zoals bijvoorbeeld een herschikking van de elektronen of de atomen in het achtergebleven ion. Op het moment dat het elektron met het ion botst, wordt de vorm van het ion opgeslagen in de fase en amplitude van het elektron en dit kan gezien worden als de probe. Als nu de elektronen die met het ion hebben gebotst interfereren met de elektronen die niet hebben gebotst, worden deze fase en amplitude opgeslagen in het hologram. Omdat de tijd tussen het ioniseren en het botsen steeds verschillend is, kunnen we de beweging van het ion in kaart brengen. Als het ion bijvoorbeeld een molecuul is en dissocieert, dan wordt dit vastgelegd in het hologram.

Dit is niet de enige tijdinformatie die wordt opgeslagen. Er is nog een tweede pomp-probe-experiment gaande. De twee elektrongolfpakketten die uiteindelijk op de detector met elkaar

Ymkje Huismans (1982) studeerde natuurkunde aan de Rijksuniversiteit Groningen. Daarna is ze begonnen aan haar promotieonderzoek aan het FOM-instituut AMOLF in Amsterdam, in de groep van Marc Vrakking. Haar onderzoek spits zich toe op het ontrafelen van de driedimensionale (interferentie) patronen die foto-elektronen maken als ze vrijkomen bij de ionisatie van atomen of moleculen met een laser. Deze patronen bevatten veel informatie, zoals de tijdinformatie van elektron- en moleculbewegingen.



huismans@amolf.nl

interfereren, worden op verschillende tijdstippen geïoniseerd. Het verschil in ionisatietijd tussen het referentie golfpakket en het objectgolfpakket verandert steeds. Als er een verandering plaatsvindt in de ionisatie-efficiëntie dan wordt dit opgeslagen in het hologram.

In figuur 7 is een berekening gedaan aan de tijden die hiermee gemoeid

zijn. In figuur 7a zijn met een versimpelde berekening alleen de banen uitgerekend die leiden tot het hologram. Hier zien we het interferentiepatroon dat we ook hebben gezien in figuur 6. Figuur 7b laat zien wat het tijdsverschil is tussen ionisatie en botsen. Het blijkt dat de tijdsverschillen hier van de orde van een paar femtoseconden zijn ($1 \text{ fs} = 10^{-15}$ seconden). In figuur 7c worden de tijdsverschillen weergegeven van het tweede pomp-probe-experiment. Hieruit blijkt dat we de elektronbeweging kunnen meten met een resolutie in het attosecondedomein ($1 \text{ as} = 10^{-18}$ seconden), precies de tijdschaal waarop elektronen bewegen!

Dat de tijdinformatie zit opgeslagen in het hologram is zeker, het extraheren van die informatie is echter nog een nieuwe uitdaging. Maar als dit lukt hebben we er een methode bij die de snelle bewegingen van elektronen kan meten. En door de lage fotonenergie ($7 \mu\text{m}$, $E_{\text{foton}} = 0,18 \text{ eV}$) is foto-elektron-

holografie erg geschikt voor systemen met een lage ionisatiepotentiaal, zoals grote moleculen. Deze zijn interessant om te bestuderen, omdat zij de basis vormen van het leven om ons heen.

M.J.J. Vrakking voltooide zijn proefschrift aan de University of California at Berkeley in 1992. Tot voor kort leidde hij een wetenschappelijke groep op het AMOLF instituut in Amsterdam, op het gebied van toepassingen van ultrakorte (femtoseconde en attoseconde) extreem-ultraviolette laserpulsen voor studies van tijdsopgelost atomaire en moleculaire dynamica. Sinds 1 maart 2010 is hij directeur van het Max-Born Instituut in Berlijn en professor aan de Freie Universität Berlin.



Referenties

- 1 G. Sansone et al., *Nature* **465** (2010) 763.
- 2 Y. Huismans et al., *Science* **331** (2011) 61.

Ken uw klassieken



Emergentie

P. W. Anderson, *More is different*, *Science* **177** (1972) 393 – 96

Emergentie versus reductionisme

In 1963, in een tijd van ook toen al afnemende overheidssubsidies voor de wetenschap, stelde Alvin Weinberg, directeur van het Oak Ridge National Laboratory, zich de vraag hoe de allocatie van researchfondsen diende te gebeuren, vooral wanneer die verschillende, vaak incommensurabele wetenschapsgebieden betrof. In een tweetal artikelen in het tijdschrift *Minerva*, getiteld *Criteria for Scientific Choice* [1], ontwikkelde hij daartoe het criterium dat “all things being equal, that field has the most scientific merit which contributes most heavily to and illuminates most brightly its neighboring scientific disciplines.” Meer specifiek moest daarbij worden bevraagd: “Does it have technological merit?

Does it have social merit, that is, does it have relevance to human welfare and the values of man?” Als toetsing van die criteria vergeleek hij moleculaire biologie en hoge-energiefysica. De eerste slaagde met vlag en wimpel maar over de laatste gaf hij als zijn mening: “The world of subnuclear physics seems remote from the rest of physical sciences. (...) As for its bearing on human welfare and technology, I believe it is essentially nil.” Niet alleen kost de hoge-energiefysica veel geld maar bovendien onttrekt ze de beste krachten aan andere disciplines: “Particle physics attracts the most ambitious and the best brains among the young physicists.” Hij bood echter een lichtpuntje. “On the other hand, if high energy physics could be made a vehicle for international cooperation (...) the expense of high energy

physics would become a virtue.”

De zogeheten ‘Weinbergcriteria’ veroorzaakten een wereldwijde schokgolf, niet alleen onder de hoge-energiefysici die hun onderzoeksbudgetten bedreigd zagen, maar ook in de ministeriële burelen waar het wetenschapsbeleid werd geformuleerd. Vele prominenten onder de fysici schoten onmiddellijk in de verdediging en vulden met hun apologetische artikelen de kolommen van *Physics Today* en andere tijdschriften. Hun voornaamste verweer was dat de elementaire-deeltjesfysica aan de basis stond van de hele fysica en chemie en aldus als de meest fundamentele onder de wetenschappen diende te worden beschouwd. “I believe”, aldus Hans Bethe (Nobelprijs 1967), “that