

Dem Attosekunden-Elektronentransport in Dielektrika auf der Spur

Nahfeldgetriebene Attosekunden-Elektronendynamik in dielektrischen Nanoteilchen

L. Seiffert, T. Fennel, Institut für Physik, Universität Rostock

Kurzgefasst

- Inelastische Elektronen-Stöße spielen eine wesentliche Rolle in der Natur und in physikalisch-technischen Bereichen
- Dennoch ist dieser Vorgang zum Beispiel in dielektrischen Medien nicht vollständig verstanden
- Wir vermessen die Stöße von Elektronen in einem Dielektrikum mit Attosekunden-Genauigkeit

Der Transport angeregter Elektronen in Medien erfolgt nicht geradlinig, sondern ist durch Stöße an den umgebenden Atomen geprägt. Die Dauer, die sich ein Elektron im Mittel zwischen zwei aufeinanderfolgenden Stößen frei bewegen kann, beträgt typischerweise nur wenige Attosekunden ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$). Bei einem Stoß kann das Elektron einerseits elastisch gestreut werden, wobei es nur die Richtung seiner Bewegung ändert. Andererseits kann es bei einem inelastischen Stoß ein Teil seiner Energie zum Befreien eines bisher im Atom gebundenen Elektron abgeben (Abbildung 1a). Die dadurch mögliche lawinenartige Erzeugung sekundärer Ladungsträger spielt eine wichtige Rolle für laserbasierte Materialbearbeitung, lichtgesteuerte Elektronik und bei der Entstehung von Strahlenschäden. Ein detailliertes Verständnis der Stoßeigenschaften eines Materials ist daher sowohl für die Grundlagenwissenschaft als auch für Anwendungen von großem Interesse, jedoch besonders für nichtleitende Materialien nur schwer zugänglich.

Die Charakterisierung der mittleren freien Weglänge zwischen zwei inelastischen Stößen ist bei niedrigen Energien ($< 50 \text{ eV}$) sowohl experimentell als auch theoretisch schwierig und es sind bisher für viele wichtige Dielektrika wie Wasser, Gewebe oder SiO_2 (Glas) keine belastbaren Daten vorhanden. Tatsächlich sind aber inelastische Stöße bei diesen Energien zum Beispiel für Strahlenschäden in Form stoßinduzierter DNA-Doppelstrangbrüche verantwortlich. Die Bestimmung der Weglänge erfolgte bisher bei konventionellen Methoden indirekt aus den messbaren optischen Eigenschaften des Materials [1]. Nun ist es erstmals gelungen, die inelastische Stoßzeit und so auch die mittlere freie

Weglänge für ein dielektrisches Material experimentell direkt zu messen [2,3]. Möglich war dies nur durch die Kombination von Methoden aus der Attosekunden- und Nanophysik und unterstützende semiklassische Rechnungen auf dem HLRN.

Im Experiment wurden durch Beschuss von SiO_2 -Kügelchen mit nur 50 nm Durchmesser mit einem extrem ultravioletten (XUV) ultrakurzen Laserpuls (250 as Pulsdauer) angeregte Elektronen bei einer Energie von etwa 30 eV erzeugt. Anschließend wurden sie mithilfe eines genau synchronisierten nahinfraroten (NIR) Laserpulses zusätzlich beschleunigt (Abbildung 1b). Die daraus resultierende Änderung der Energie kann anschließend für die aus dem Kügelchen emittierten Elektronen gemessen werden. Wenn die Verzögerungszeit zwischen den beiden Laserpuls systematisch verändert wird, spiegelt sich dies im Energie-Spektrum als zeitabhängige, periodische Oszillation wider (Abbildung 2).

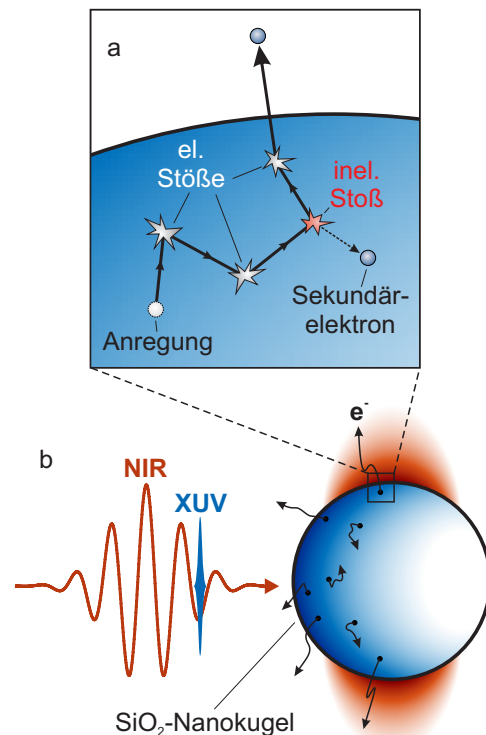


Abbildung 1: (a) Ein angeregtes Elektron vollführt bei seiner Propagation durch dielektrisches Material elastische und inelastische Stöße. (b) Schema des Attosekunden-Experimentes an isolierten SiO_2 -Nanokügelchen. Elektronen werden durch einen XUV-Puls erzeugt und propagieren im Nahfeld eines synchronisierten NIR-Pulses. Aus [3].

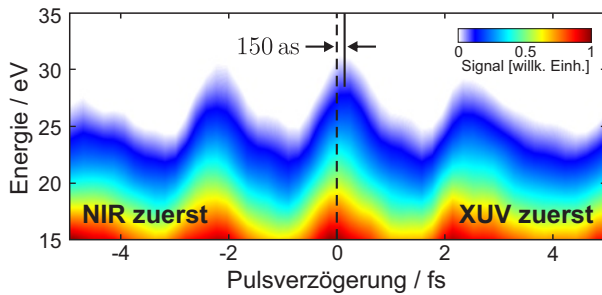


Abbildung 2: Der Impulsübertrag auf die Elektronen durch das NIR-Feld führt zu Schwingungen der Spektren mit der Verzögerungszeit zwischen dem XUV- und NIR-Puls. Die Nanokügelchen-Messung zeigt eine charakteristische Verzögerung von 150 as, die direkt mit der inelastischen Stoßzeit verknüpft ist. Aus [3].

Durch den Vergleich der Phase dieser Oszillation mit einer Referenz-Messung kann der mittlere Emissionszeitpunkt der Elektronen aus den Kügelchen bestimmt werden. Der Trick des Experiments besteht darin, dass die Messung an den Nanokugeln und die Referenzmessung gleichzeitig für identische Parameter durchgeführt werden. Dazu werden beide Laserstrahlen in einer Vakuumkammer auf einen Strahl aus einzelnen Nanokügelchen fokussiert. Die Dichte der Kügelchen im Strahl ist allerdings so gering, dass nur wenige Schüsse des XUV-Lasers ein Kügelchen treffen. Schüsse, die kein Teilchen treffen setzen jedoch aus dem Hintergrundgas einige Elektronen frei, welche die Referenzmessung darstellen. Bei einem Kügelchen-Treffer werden hingegen deutlich mehr Elektronen freigesetzt und jeder Laserschuss kann daher anhand der Anzahl an detektierten Elektronen als Referenz oder Signal identifiziert werden. Aus dem Experiment wurde eine Verzögerung der Elektronenemission aus den Nanokügelchen von 150 as gegenüber der Gas-Referenz bestimmt (Abbildung 2).

Die physikalische Ursache der Verzögerung ließ sich nur mit Hilfe von auf dem HLRN durchgeführten parallelisierten semi-klassischen Monte-Carlo-Simulationen [4] aufklären. Dabei wurden Trajektorien für die innerhalb der Kügelchen erzeugten Photoelektronen berechnet und ihre Stöße im Material statistisch ausgewürfelt. Auf diese Weise konnte der Einfluss der elastischen und inelastischen Stöße auf die Verzögerungszeit systematisch analysiert werden und führte zu dem überraschenden Ergebnis, dass die Verzögerung der Elektronenemission für die meisten Dielektrika von der elastischen Stoßzeit unabhängig ist. Wir konnten zeigen, dass der Effekt der elastischen Stöße durch die Abschwächung des NIR-Feldes innerhalb der Dielektrika aufgehoben wird und somit die Verzögerung vorwiegend durch die inelastische

Stoßzeit bestimmt ist. Die inelastische Stoßzeit spiegelt dabei die Lebensdauer der angeregten Elektronen im Material wider und kann mithilfe der Simulation aus den experimentellen Daten extrahiert werden. Für SiO_2 beträgt die aus dem Experiment bestimmte inelastische Stoßzeit 370 as bei 25 eV. Das entspricht einer mittleren freien Weglänge von 1,06 nm.

Da unsere Methode auch für andere dielektrische Materialien und in einem weiten Energiebereich einsetzbar ist können beispielsweise auch inelastische Stöße in Wassertröpfchen charakterisiert werden. Da das menschliche Gewebe zu einem großen Anteil aus Wasser besteht könnte unsere Methode daher in der Zukunft helfen, die Vorhersage von Strahlenschäden zu verbessern.

WWW

<http://www.physik.uni-rostock.de/clustertheorie>

Weitere Informationen

- [1] S. Tanuma *et al.*, *Surf. Interface Anal.* **17**, 927939 (1991). doi:10.1002/sia.740171305
- [2] L. Seiffert *et al.*, *Nat. Phys.* **13**, 766 (2017). doi: 10.1038/nphys4129
- [3] L. Seiffert *et al.*, *Phys. unserer Zeit* **48**, 217 (2017). doi:10.1002/piuz.201770506
- [4] F. Süßmann *et al.*, *Nat. Commun.* **6**, 7944 (2016). doi:10.1038/ncomms8944

Projektpartner

M. F. Kling, Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Garching

F. Calegari, Universität Hamburg, Hamburg

Förderung

DFG SPP 1840 „Quantum Dynamics in Tailored Intense fields“