

Dem “Molecular Movie” auf der Spur

Atomistische Beschreibung statischer und dynamischer Röntgenbeugung an finiten Vielteilchensystemen

C. Peltz, K. Sander, T. Fennel, *Institut für Physik, Universität Rostock*

Kurzgefasst

- Einzelschussröntgenbeugung ist ein vielversprechendes Verfahren zur strukturellen Charakterisierung einzelner Nanopartikel in der Gasphase und von besonderer Bedeutung für die Strukturaufklärung von Nanoteilchen, die sich nicht kristallisieren lassen (z.B. viele biologisch relevante Makromoleküle) und gängigen Verfahren, wie der Kristallografie an Synchrotrons, unzugänglich sind.
- Die Herausforderung bei der Interpretation der Einzelschussröntgenbeugung ist die eindeutige Rekonstruktion der Struktur des streuenden Objektes aus dem aufgezeichneten Streubild.
- Vollständige Simulationen sind ein wichtiges Werkzeug zur Weiterentwicklung der Methode, da sie den simultanen Zugriff auf das gestreute Feld und die zugrundeliegende Objektdynamik erlauben.

Seit einigen Jahren nimmt die Zahl sogenannter Freie-Elektronen-Laser (FELs) stetig zu. Wie der Name es vermuten lässt, stellen diese Großforschungsanlagen ganz ähnlich zu einem traditionellem Laser kohärente Strahlung zur Verfügung, welche prinzipiell die Beobachtung von Interferenzphänomenen erlaubt und sich so beispielsweise für Streuexperimente eignet. Im Gegensatz zu konventionellen Lasern sind FELs jedoch in der Lage, solche Strahlung auch im Bereich extrem kurzer Wellenlängen (bis hinunter zum Abstand der Atome in Festkörpermaterie) noch mit sehr hohen Photonenströmen zu liefern, was die erreichbare räumliche Auflösung dramatisch erhöht.

Eines der großen Fernziele dieser Forschungseinrichtungen ist die Aufnahme des berühmten “Molecular Movie“, gemeint ist damit das Aufzeichnen der räumlichen und zeitlichen Dynamik schneller Prozesse wie chemischer Reaktionen auf den ihr eigenen ultrakleinen (10^{-10} m) und ultraschnellen (10^{-15} s) Skalen.

Der zugrundeliegende Mechanismus ist die sogenannte Einzelschussröntgenbeugung, bei der FEL-Röntgenpulse an einzelnen, isolierten Nanopartikeln, wie z.B. Biomolekülen in der Gasphase, gestreut werden und so eine Momentaufnahme der Objektstruktur in das Streubild eingepreßt wird. Eine der Hauptschwierigkeiten solcher Experimente ist die

Interpretation der so aufgenommenen Streubilder, d.h. die Verknüpfung der im Streubild beobachteten Signaturen mit der Objektstruktur. Das liegt zum einen am unvollständigen Informationsgehalt in einem solchen Streubild, es werden beispielsweise nur Intensitäten und nicht die Phase der gestreuten Strahlung aufgezeichnet, und zum anderen an der Komplexität der untersuchten Objekte. Ein großes Biomolekül ist beispielsweise ein hochkomplexes Objekt mit sehr vielen Freiheitsgraden was die Interpretation zusätzlich erschwert. Um ein solides Fundament für die Weiterentwicklung der Methode zur Verfügung zu haben, hat es sich als hilfreich erwiesen, zunächst einfachere Modellsysteme wie Cluster und Nanosphären zu betrachten.

In einem Schlüsselexperiment am FEL in Hamburg (FLASH) konnten auf diese Weise beispielsweise völlig unerwartete metastabile Metallclusterformen in der Gasphase nachgewiesen werden [1], siehe Abbildung 1. Diese Formen können nur in einem Streuexperiment zweifelsfrei identifiziert werden, da die für konventionelle Elektronenmikroskopie erforderliche Deposition auf einer Oberfläche möglicherweise zu einer Veränderung der Struktur führen könnte.

Ein Nachteil konventioneller Röntgenbeugung an FEL Großanlagen ist die trotz großer internationaler Anstrengungen limitierte Verfügbarkeit der Methode aufgrund der limitierten Strahlzeit. Es gibt nur wenige geeignete Anlagen auf der Welt (<10) und typischerweise können an einem FEL nur ein oder zwei Experimente gleichzeitig durchgeführt werden. In einem zukunftsweisenden Experiment am Max-Born-Institut in Berlin konnte hier jedoch kürzlich ein Durchbruch erzielt werden, indem erstmals Einzelschussröntgenbeugung an freien Nanoteilchen im Labor mittels Hoher-Harmonischen Strahlung

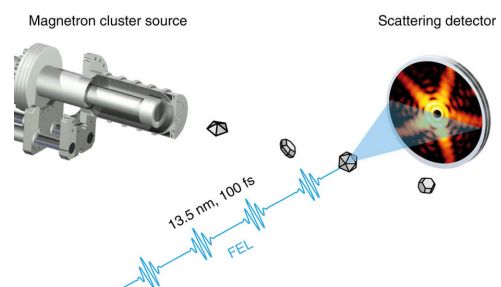


Abbildung 1: Schematische Darstellung eines Einzelschussröntgenbeugungsexperiments an Metallclustern (durchgeführt am FLASH in Hamburg). Unterschiedliche Clusterformen zeigen sehr charakteristische Signaturen im Streubild [1].

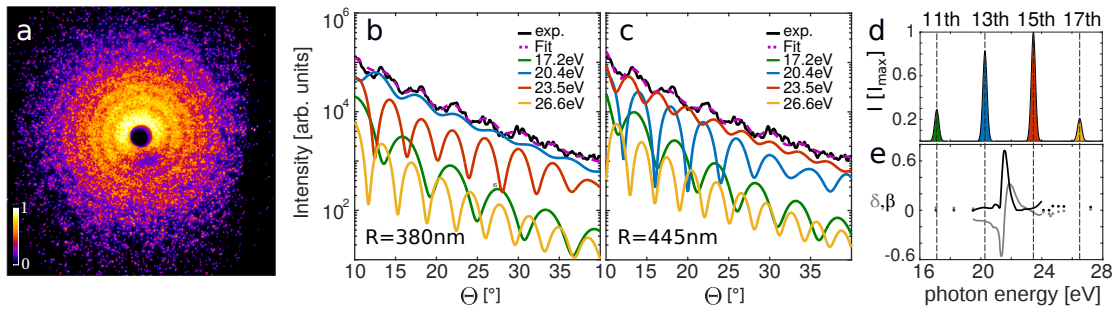


Abbildung 2: (a) Mit einer Hohe-Harmonische-Quelle aufgenommenes Streubild eines Heliumnanotropfens (b)-(c) errechnete Fits an das radiale Profil des aufgenommenen Streubildes mit den Beiträgen der 4 enthaltenen Harmonischen Ordnungen (d) gemitteltes Spektrum der Harmonischen Strahlung (e) optische Parameter von Helium im verwendeten Spektralbereich [2]

demonstriert wurde [2]. Die dabei aufgezeichneten Streubilder von Heliumnanotropfen, siehe Abbildung 2, sind allerdings das Resultat der Streuung mehrerer Harmonischer Frequenzkomponenten gleichzeitig, wodurch die Analyse der Streubilder zusätzlich erschwert wird. Hier waren unsere auf dem HLRN durchgeführten Rechnungen entscheidend für die korrekte Interpretation der Streubilder.

In dem hier verwendeten Wellenlängenbereich (einige 10 nm) sind die Streubilder besonders sensibel auf die Form und Orientierung der Teilchen, geben jedoch nur bedingt Aufschluss über die innere Struktur. Kurzwelligere Röntgenstrahlung hingegen ist sensitiv auf die innere Struktur, enthält aber nur unvollständige Tiefeninformation. Im Rahmen dieses Projektes untersuchen wir, wie sich diese beiden Regime in einem kombinierten Zweifarbenstreuexperiment optimal vereinen lassen. Es Projektziel ist es, die aus den Streubildern bei großen Wellenlängen gewonnene Orientierung des Nanopartikels im Raum optimal zu nutzen, um die Streubilder bei kleiner Wellenlängen zur Rekonstruktion innerer Strukturen, wie z.B. Löchern, nutzbar zu machen. Für diese Untersuchungen kommen sowohl kontinuierliche als auch diskrete Maxwell-Löser wie der eigens entwickelte CSDDA-Code zum Einsatz [3].

Zur Interpretation von Streubildern wird bisher grundsätzlich davon ausgegangen, dass sich die Reaktion des Systems auf die zur Bildgebung verwendete Strahlung in der Näherung linearer Antwort beschreiben lässt. Inwieweit diese Annahme bei hohen Intensitäten und insbesondere in der Nähe von elektronischen Resonanzen gerechtfertigt ist, ist eine fundamentale, bisher unbeantwortete Frage, der im Rahmen dieses Projektes nachgegangen werden soll. Darüber hinaus wollen wir uns zukünftig, angeregt durch die oben erwähnte Realisierung der Einzelschussröntgenbeugung im Labor mittels Hoher-Harmonischer, mit den Mechanismen der Erzeugung Hoher-Harmonischer auseinandersetzen. Für diese Untersuchungen soll der im Rahmen eines früheren HLRN Projektes entwickelte, voll elektro-

magnetische, Code MicPIC verwendet werden, der in der Lage ist, sowohl die volle, atomar aufgelöste Plasmadynamik in großen Vielteilchensystemen zu modellieren als auch die selbstkonsistent resultierende Strahlung [4,5].

WWW

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

Weitere Informationen

- [1] I. Barke, H. Hartmann, D. Rupp, L. Flückiger, M. Sauppe, M. Adolph, S. Schorb, C. Bostedt, R. Treusch, C. Peltz, S. Bartling, Th. Fennel, K-H. Meiwes-Broer, Th. Möller, *Nat. Commun.* **6**, 6187 (2015). doi:10.1038/ncomms7187
- [2] D. Rupp, N. Monesrud, B. Langbehn, M. Sauppe, J. Zimmermann, Y. Ovcharenko, Th. Möller, F. Frassetto, L. Poletto, A. Trabattoni, F. Calegari, M. Nisoli, K. Sander, C. Peltz, M.J. Vrakking, Th. Fennel and A. Rouzée, *Nat. Commun.* **8**, 493 (2017). doi:10.1038/s41467-017-00287-z
- [3] K. Sander, C. Peltz, C. Varin, S. Scheel, T. Brabec, T. Fennel, *J. Phys. B. At. Mol. Opt. Phys* **48**, 224004 (2015). doi:10.1088/0953-4075/48/20/204004
- [4] C. Varin, C. Peltz, T. Brabec, T. Fennel, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 175007 (2012). doi: 10.1103/PhysRevLett.108.175007
- [5] C. Peltz, C. Varin, T. Brabec, T. Fennel, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 133401 (2014). doi: 10.1103/PhysRevLett.113.133401

Förderung

BMBF Projekt "Nanoteilchenstrukt", DFG Heisenbergstipendium "Attosekundenkontrolle der Elektrodynamik in finiten Systemen und ihre dynamische Charakterisierung mittels Röntgenstreuung"