

ULTRAKURZZEITPHYSIK

Attosekunden-Stoppuhr für Kristalle

Wenn sich Elektronen durch einen Festkörper bewegen, wechselwirken sie laufend miteinander und definieren so wichtige Eigenschaften des Materials. Hochpräzise Kollisionsexperimente erlauben nun erstmals einen scharfen Blick auf die für Festkörper relevanten elektronischen Korrelationen direkt in der Zeitdomäne.

Jeder Kubikzentimeter eines Festkörpers enthält mehr als 10^{23} Elektronen, die sich blitzschnell durch das Kristallgitter bewegen und untereinander auf komplexe Art wechselwirken. Diese Vielteilchen-Korrelationen bestimmen maßgeblich die Eigenschaften des Festkörpers und sind die treibende Kraft hinter exotischen Phasenübergängen wie etwa der Supraleitung. Allerdings sind diese Korrelationen experimentell oft schwer zu bestimmen, da sie sich oft nur indirekt bemerkbar machen. Unsere Forschungsgruppen an der Universität Regensburg und der University of Michigan haben nun entdeckt, dass man diese Wechselwirkungen direkt in der Zeitdomäne vermessen kann.

Dafür bedienen wir uns des gleichen Tricks, mit dem Navigationssysteme Staus und Verkehrsbehinderungen identifizieren: Wie im Verkehr ändert sich die Geschwindigkeit von Elektronen, wenn sie „im Stau“ stecken, weil sie stark mit ihrer Umgebung interagieren. Um die ultraschnelle Bewegung der Elektronen direkt sehen zu können, messen wir ihre Verzögerung, nachdem wir sie mit Licht in Bewegung versetzt haben.

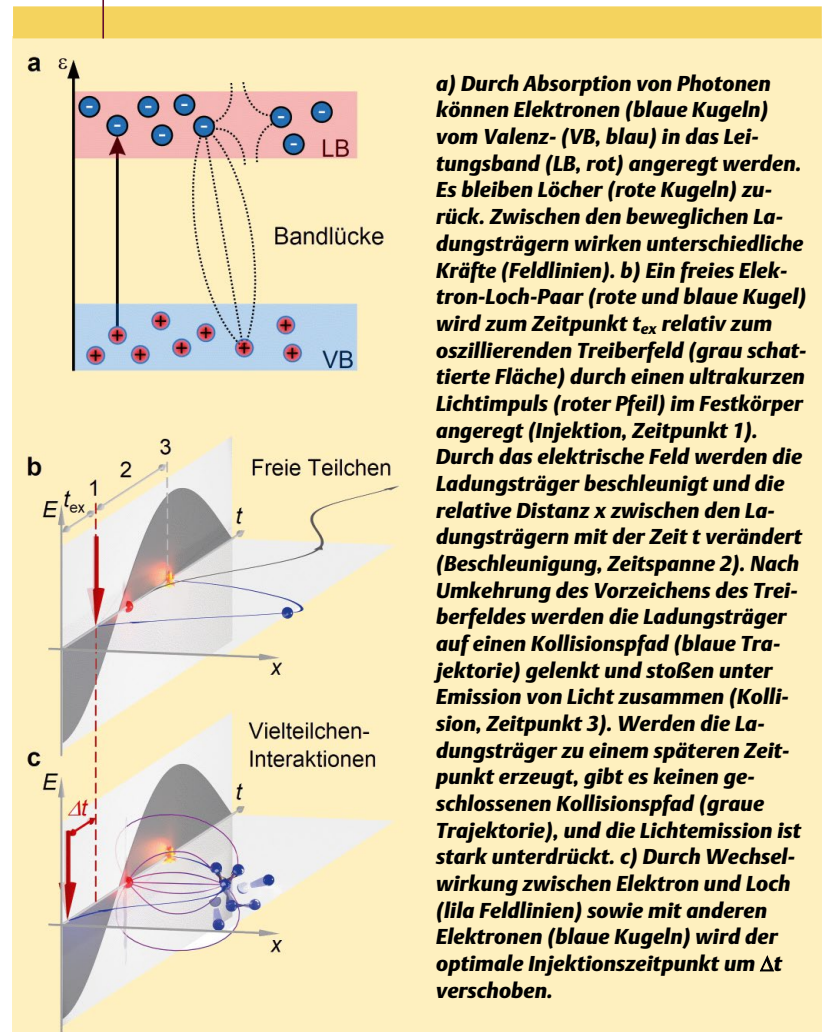
Die zentrale Herausforderung dabei liegt in der Zeitskala: Die Dynamik von Ladungsträgern in einem Festkörper spielt sich in Femto- bis Attosekunden ab. Wenn man Korrelationen direkt in der Zeitdomäne nachweisen möchte, ist daher eine entsprechend hohe zeitliche Auflösung notwendig.

Abbildung 1 zeigt das Prinzip unserer Experimente mit dem Halbleiter Wolframdiselenid (WSe_2). Mit

Photonen im nahen Infrarot (NIR), deren Energie genau dessen Bandlücke überbrückt, können wir Quantensprünge von Elektronen in das Leitungsband auslösen, wobei ein positiv geladenes Loch im Valenzband zurückbleibt. Gleichzeitig strahlen wir einen hochintensiven Lichtimpuls im ferninfraroten Terahertz-Spektralbereich (THz) ein. Das

oszillierende Trägerfeld des Impulses dient als extrem schnelle Vorspannung, um die Ladungsträger im Kristall schneller als innerhalb einer einzigen Lichtschwingung zu beschleunigen (Abbildung 1b) [1]. Aufgrund ihrer gegensätzlichen elektrischen Ladung werden Elektron und Loch zunächst auseinandergetrieben; ihr relativer Abstand x erhöht sich damit. Sobald das THz-Feld sein Vorzeichen ändert, wird die Beschleunigung invertiert. Bei $x = 0$ kollidieren die Ladungsträger mit hoher Energie (blaue Trajektorie) und das Elektron fällt zurück ins Valenzband. Die überschüssige Energie wird als hochenergetisches Licht, auch Seitenbandstrahlung hoher Ordnung (HSB) genannt, ausgesendet.

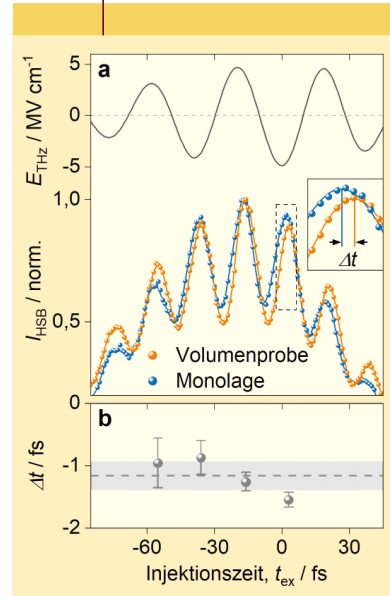
ABB. 1 SCHEMA DES EXPERIMENTS



Wegen der ultrakurzen Dauer der NIR-Impulse von nur 9 fs können die Elektron-Loch-Paare zu einem fest definierten Zeitpunkt t_{ex} innerhalb einer einzigen Halbschwingung des THz-Impulses erzeugt werden („Injektion“). Entscheidend ist, dass nicht jeder Injektionszeitpunkt zu gleich starker HSB führt. Werden die Ladungsträger kurz nach einem Nulldurchgang des Feldes angeregt, werden sie so lange durch das THz-Feld voneinander weg beschleunigt, dass eine spätere Kollision unmöglich wird (Abbildung 1b, graue Trajektorie). In der Regel wird HSB am stärksten emittiert, wenn die Ladungsträger kurz vor einem Nulldurchgang des Feldes injiziert werden und damit die Kollisionen sehr effizient stattfinden können. Treten starke Korrelationen zwischen Ladungsträgern auf (Abbildung 1c), zum Beispiel aufgrund starker Coulomb-Anziehung zwischen Elektron und Loch oder Wechselwirkung mit anderen Elektronen, verändert sich die THz-getriebene Dynamik, und die Injektionszeit, zu der maximal viel HSB emittiert wird, verschiebt sich um Δt .

Im Experiment können wir die Stärke der Coulomb-Wechselwirkung einstellen, indem wir eine 60 nm dicke Probe WSe_2 mit einer atomar dünnen Schicht desselben Materials vergleichen [2]. In der ultimativ dünnen Schicht können die elektrischen Feldlinien zwischen Elektron und Loch oben und unten aus der Probe heraustreten, sodass sie nicht effektiv abgeschirmt werden. Dadurch sind Coulomb-Korrelationen um ein Vielfaches stärker. Die HSB-Emission aus beiden Proben (Abbildung 2a) zeigt klare Modulationen, die gute und schlechte Injektionszeiten widerspiegeln. Allerdings sind die Intensitätsmaxima bei der Monolage systematisch zu kleineren Injektionszeiten verschoben.

ABB. 2 | SUBZYKLEN-DYNAMIK



a) Oszillierendes Treiberfeld (oben) sowie Lichtemission (unten) einer Volumenprobe (orange) und einer Monolage WSe_2 (blau) für verschiedene Injektionszeiten t_{ex} . Für beide Festkörper sind gute und schlechte Injektionszeiten anhand der zeitlich variierenden Intensität festzustellen. Deutlich zu erkennen ist jedoch, dass die Injektionszeiten für maximale Emissionsintensität für die Monolage systematisch zu früheren Zeiten verschoben ist (siehe Vergrößerung des gestrichelten Rechtecks). b) Eine quantitative Analyse dieser Verschiebung für die einzelnen Emissionsmaxima verdeutlicht den signifikanten Unterschied in den Vielteilchen-Wechselwirkungen in der Volumenprobe und der Monolage.

Diese winzige, aber zuverlässig messbare Verschiebung beträgt über die hier gezeigten Maxima gemittelt $1,2 \pm 0,3$ fs (Abbildung 2b). Da die Coulomb-Kraft attraktiv zwischen Elektron und Loch wirkt, müssen diese in der Monolage früher injiziert werden, damit das THz-Feld sie dennoch ausreichend weit separieren kann. Nur so können sie während der Beschleunigung genug Schwung mitnehmen, um anschließend mit hoher Energie zu kollidieren.

Das entspricht einer Verschiebung der Emissionsmaxima zu früheren Injektionszeiten. Die Fehlerbalken von weniger als 300 as werden durch eine aktive Stabilisierung des gesamten optischen Aufbaus erreicht und entsprechen weniger als 1% der Oszillationsdauer des Treiberfeldes [3].

Um unser Konzept auf den Prüfstand zu stellen, haben wir auch untersucht, wie sich die Rekollisionszeit verändert, wenn wir die Stärke des beschleunigenden THz-Feldes variieren. Für stärkere Felder wird die Anziehung zwischen Elektron und Loch tatsächlich immer weniger relevant. Dies lässt sich mit quantenmechanischen Modellen sehr genau erklären. Außerdem können wir in atomar dünnem WSe_2 die wichtige Eigenschaft des sogenannten Valley-Pseudospins kontrollieren [4], womit sich Vielteilchen-Korrelationen präzise einstellen lassen.

Mit Attosekunden-Präzision lässt sich nun zum ersten Mal der Einfluss von Korrelationen auf delokalisierte Elektronen direkt in der Zeitdomäne untersuchen. Diese neuartige Stoppuhr könnte in Zukunft besonders hilfreich dabei sein, Vielteilchenkorrelationen zu verstehen, die überraschenden Phasenübergängen zugrunde liegen. Auch für die Quanteninformationstechnologie könnte Attosekunden-Beschleunigung von elektrischen Strömen relevant werden.

Literatur

- [1] J. Reimann et al., Nature **2018**, 562, 396.
- [2] J. Freudenstein et al., Nature **2022**, 610, 290.
- [3] M. Meierhofer et al., arXiv:2207.10073, 2022.
- [4] F. Langer et al., Nature **2018**, 557, 76.

Josef Freudenstein, Manuel Meierhofer, Rupert Huber, Universität Regensburg; Mackillo Kira, University of Michigan