

MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

Inhalte

Editorial
Personalinformationen
Betriebsrat
Forschungsergebnisse/Research Highlights
Projekteinwerbung
Allgemeines
EDV/IT

Editorial

Liebe Mitarbeiterinnen und Mitarbeiter,

Der Sommer geht nun langsam zu Ende und ich hoffe, dass Sie Ihre Urlaubstage entspannt genießen und sich gut erholen konnten. Für ein Forschungsinstitut wie das MBI, ist es wichtig, dass wir einmal nicht via E-Mail erreichbar sind und die Erholungszeit zum Aufladen des eigenen „Akkus“ nutzen, damit wir auch weiterhin unseren Aufgaben auf hohem Niveau gerecht werden können. In der Alltagspraxis sind wir uns nicht immer bewusst, dass unsere eigentliche Aufgabe als Forscher ist, innovativ zu sein und originäre Forschung zu betreiben. Aber genau darum geht es.

Vor einigen Tagen wurde das wieder einmal deutlich, als ich einen Forschungsantrag aus dem Ausland zur Begutachtung erhalten habe. Bei der Einleitung des Antrags war ich zunächst vom logischen Aufbau der Arbeit recht angetan bis ich allerdings beim Weiterlesen immer mehr den Eindruck bekam, dass ich den Text schon einmal gelesen habe. Genauso war es auch, und noch schlimmer: Im Prinzip las ich die exakt gleichen Worte aus einem von mir bereits Anfang des Jahres veröffentlichten Übersichtsbeitrag.

Wir haben selten Anlass über dieses Thema zu sprechen, aber ich gehe davon aus, dass sich alle Wissenschaftler am MBI bewusst sind wie falsch ein solches Verhalten ist. Wissenschaft bedeutet, Neues und Eigenständiges zu schaffen. Es mag mitunter schmerzhaft und der Weg mit zahlreichen Hindernissen gepflastert sein, es mag immer wieder zu Rückschlägen kommen und zu Frustrationen führen. Dennoch eigene wissenschaftliche Ideen und Ansätze zu entwickeln, diese darzustellen, zu verteidigen und in unseren eigenen überzeugenden Worten zu verfassen, ist die einzige Art und Weise wie Wissenschaft funktioniert. Daran führt kein Weg vorbei und für das Kopieren von fremden Arbeiten gibt es definitiv keinen Raum.

In den kommenden Wochen gibt es einige Termine, auf die ich nochmals hinweisen möchte. Erstens findet am Mittwoch, dem 4. September unser traditionelles Sommerfest statt. Eine nette Gelegenheit alle zu sehen und das ein oder andere Urlaubserlebnis zu teilen.

Dann möchte ich Sie gerne an die Sitzung unseres wissenschaftlichen Beirats am 24. September erinnern. Wir haben die

Editorial

Dear members of the MBI,

With summer slowly winding down, I welcome all of you back after what has hopefully been a restful and inspiring vacation. For a research institute like MBI, the vacation period is an important period to re-charge the batteries, to take a break from living by e-mail, and for getting our minds fresh for the innovative and original work that we try to do in the upcoming period.

“Innovative and original”, we do not stress this on a daily basis, but that is of course what working at MBI is all about. I was reminded of this a couple of days ago, when I refereed a research proposal that was sent to me from abroad. As I was reading the introduction to the proposal, I appreciated the nice way that the author presented the logic of his research proposal... until I somehow got the impression that I had read all this before. And I had, in fact, it went beyond that: I basically read back the exact words that I had written in a review article that I published earlier this year! We do not talk about this on a regular basis, but I hope that everybody at MBI understands how wrong this type of behavior is. Science is about being “innovative and original”. It is sometimes a hard and painful process, with many frustrations and setbacks along the way, but to develop your own original result and then to present it and write about it in your own words is the only way that science is to be done – there is no place for copying the work of others.

In the upcoming period, there are a number of events that I would like to draw your attention to. On Wednesday September 4th, we start with the “traditional” Summerfest, a nice opportunity for all to see each other again and discuss our favorite vacation stories.

And then I remind you that on Tuesday September 24th there is the annual meeting of the MBI Beirat, which we have moved to this period in the year, in order to involve the Beirat more directly in the strategic planning that MBI is always asked to perform this time of year, through the formulation of the so-called “Programmbudget”.

We will of course also use this opportunity to discuss important processes that are going on at the institute, such as the process to find a successor for Prof. Sandner as Director of Division B,

MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

jährliche Beiratssitzung in diese Jahreszeit verschoben, um den Beirat über die Erstellung des Programmbudgets, die immer in diese Zeit fällt, intensiver in die strategische Ausrichtung des Institutes miteinbeziehen zu können.

Natürlich nutzen wir diese Gelegenheit auch um weitere wichtige Entwicklungen zu besprechen, wie u.a. die Nachfolge von Herrn Prof. Sandner. Die monatelange Suche nach einem passenden Nachfolger, vorbehaltlich unvorhersehbarer Rückschläge, nähert sich dem Ende.

Für die kommenden Monate wünsche ich Ihnen eine produktive Zeit. Versuchen Sie Ihre im Urlaub gewonnene Energie möglichst lange mitzunehmen und Sie werden erstaunt sein, welche Ergebnisse Sie erzielen.

Für das Direktorium
Marc Vrakking

a process that – barring any setbacks - is now nearing its end. I wish you all a very productive time at MBI in the coming period. Try to keep your vacation state-of-mind for a while, and you will be amazed at the results that you will achieve!

For the Board of Directors
Marc Vrakking

Personalinformationen

Neue Mitarbeiter im Max-Born-Institut
(Stand 24.08.2013)

Timm Bredtmann
Wissenschaftler A1
Telefon: 1213
E-Mail: bredtman@mbi-berlin.de
Beginn 01.07.2013



Benjamin H. Lewis
Gastwissenschaftler B1
Telefon: 1388
E-Mail: lewis@mbi-berlin.de
Beginn: 15.05.2013



Dr. Gopal Dixit
Wissenschaftler A1
Telefon: 1213
E-Mail: dixit@mbi-berlin.de
Beginn: 01.08.2013



Florian Mollica
Gastwissenschaftler B1
Telefon: n.n.
E-Mail: mollica@mbi-berlin.de
Beginn: 05.08.2013



Luca Antonelli
Gastwissenschaftler B1
Telefon: n.n.
E-Mail: antonell@mbi-berlin.de
Beginn: 05.08.2013



Dr. Stefano Veronesi
Gastwissenschaftler A3
Telefon: 1288
E-Mail:
Beginn: 22.07.2013



Alessandro Flacco
Gastwissenschaftler B1
Telefon: n.n.
E-Mail: flacco@mbi-berlin.de
Beginn: 05.08.2013



Dipl.-Phys. Nils Raabe
Doktorand C2
Telefon: 1425
E-Mail: raabe@mbi-berlin.de
Beginn: 01.08.2013



Giulia Folpini
Gastwissenschaftlerin B1
Telefon: n.n.
E-Mail: n.n.
Beginn: 05.08.2013



Benjamin Klessen
Stud. & wiss. Hilfskraft A2
Telefon: 1214
E-Mail: klessen@mbi-berlin.de
Beginn: 03.06.2013



MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

Christian Patzek
Stud. & wiss. Hilfskraft C2
Telefon: 1442
E-Mail: patzek@mbi-berlin.de
Beginn: 15.07.2013



Boris Peev
Stud. & wiss. Hilfskraft A2
Telefon: 1246
E-Mail: peev@mbi-berlin.de
Beginn: 01.08.2013



André Sachse
Hilfskraft EDV
E-Mail: asachse@mbi-berlin.de
Beginn: 17.06.2013

Ausgeschiedene Mitarbeiter
(Stand 24.08.2013)

| | |
|---------------------------|---------------------------|
| Dr. Luke E. Chipperfield | Wissenschaftler, B2 |
| Dr. Susanta Das | Wissenschaftler, C2 |
| Dr. Benjamin Koeppe | Wissenschaftler, C1 |
| Benjamin H. Lewis | Gastwissenschaftler, B1 |
| Dr. Elias Martinez Moreno | Wissenschaftler, C3 |
| Dr. Serguei Patchkovskii | Gastwissenschaftler, B2 |
| Mirabelle Prémont-Schwarz | Doktorandin, C1 |
| Dr. Usman Sapaev | Wissenschaftler, A1 |
| Dr. Thomas Schultz | Wissenschaftler, A2 |
| Dr. Ralf Staudemeyer | EDV |
| Dr. Saltanat Sadykova | Gastwissenschaftlerin, B1 |
| Dr. Sargis Ter-Avetisyan | Gastwissenschaftler, B1 |
| Julius Zielinski | Diplomand, A2 |

Wir wünschen allen Mitarbeitern einen erfolgreichen Start im Max-Born-Institut.

Wir wünschen allen ausgeschiedenen Mitarbeitern alles Gute für ihre private und berufliche Zukunft.

Habilitationen/Abgeschlossene Dissertationen/Master- & Diplomarbeiten

J. Kopprasch
Elektronendynamik von Ge(001) Oberflächenzuständen
Dissertation (2013) Freie Universität Berlin

M. Bock
Programmable ultrashort highly localized wave packets
Dissertation (2013) Humboldt Universität

M. Prémont-Schwarz
Elementary solute-solvent interactions and the photophysical properties of photoacids
Dissertation (2013) Humboldt Universität

MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

Betriebsrat MBI

Liebe Kolleginnen und Kollegen,

kaum zu glauben aber wahr: Schon im Frühjahr des nächsten Jahres wird die 4-jährige Amtsperiode des 2010 gewählten Betriebsrates enden. Deshalb steht im Zeitraum von Anfang März bis Ende Mai 2014 die Wahl des neuen Betriebsrates im Max-Born-Institut an. Das scheint zwar alles noch in ferner Zukunft zu liegen, dennoch muss bereits jetzt mit den ersten Vorbereitungen begonnen werden.

Ein erster wichtiger Schritt wird die „Bestellung“ des Wahlvorstandes sein. „Bestellung“ hört sich einfacher an als es eigentlich ist: Schließlich gibt es keinen Katalog, aus dem man einfach bestellen könnte, sondern der amtierende Betriebsrat muss Kolleginnen und Kollegen finden, die bereit sind, diese verantwortungsvolle Aufgabe zu übernehmen. Ist der Wahlvorstand bestellt, kann er nach entsprechender Schulung seine Tätigkeit aufnehmen.

Eine Wahl wäre keine Wahl, gäbe es nicht eine ausreichende Anzahl von KandidatInnen, unter denen man tatsächlich auswählen könnte. Hier ist Ihre Mitarbeit und Hilfe gefragt: Könnten Sie sich vorstellen, das interessante und verantwortungsvolle Amt eines Betriebsratsmitgliedes für die kommenden 4 Jahre wahrzunehmen? Dann scheuen Sie sich bitte nicht, in Kontakt mit uns zu treten! Es wäre sehr zu begrüßen, wenn es gelänge, aus allen am Institut vertretenen Beschäftigtengruppen wie WissenschaftlerInnen, TechnikerInnen sowie Verwaltung und Infrastruktur KandidatInnen zu gewinnen.

Wir sind fest davon überzeugt, dass so die unterschiedlichen Ansprüche und Interessen der verschiedenen Beschäftigtengruppen in einem breit aufgestellten Betriebsrat am besten wahrgenommen werden können. Deshalb keine Bange: Einfach Kontakt aufnehmen unter betriebsrat@mbi-berlin.de oder Tel. 1345 oder gerne mit jedem BR-Mitglied persönlich!

Ihren Anregungen, Vorschlägen und besonders Bewerbungen sehen wir erwartungsvoll entgegen und verbleiben

mit freundlichen Grüßen
Ihr Betriebsrat

MBI Staff Council

Dear colleagues,

Time flies and in the forthcoming spring the four-year term of the current staff council elected in 2010 will end. Therefore, from the beginning of March till the end of May 2014 a new staff council will have to be elected. Although it still seems far away, we have to get started.

Appointing an election committee will be an important first step. That sounds rather unspectacular, but it isn't, as potential candidates cannot simply be ordered to do this work. The current staff council has to address colleagues in the institute who are willing to take on this responsible task. As soon as the election committee is appointed and accordingly trained it can start its work.

An election would not be an election if there weren't a sufficient number of potential candidates. Your assistance and help is required in this very matter. Would you like to assume the responsible task of a member of the staff council for the next 4 years? If so, we encourage you to contact us. In terms of a well-balanced staff council it would be preferable if candidates from all employment groups within the institute such as scientists and technicians as well as staff from the administration and infrastructure divisions apply.

We are convinced that the different demands and concerns of the various employment groups can best be represented by a broadly positioned staff council. Therefore do not hesitate to contact any member of the staff council - personally, by telephone or by email: betriebsrat@mbi-berlin.de

The staff council is looking forward to your proposals and suggestions and in particular to your applications.

With kind regards,
Your Staff Council

MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

Forschungsergebnisse

Echtzeitbeobachtung von Elektronendynamiken in Molekülen

Eine wichtige Anwendung für ultrakurze Laserimpulse mit einer Impulsdauer im Attosekundenbereich ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) ist das Kontrollieren von Elektronendynamiken in Molekülen. Würde es gelingen, Elektronen auf ihrer natürlichen Zeitskala von einigen hundert Attosekunden bis wenigen Femtosekunden ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) zu manipulieren, wäre es vielleicht möglich, molekulare Prozesse mit unerreichter Präzision zu steuern. Theoretische Arbeiten der letzten Jahre sagen vorher, dass eine Ladung (positive Fehlstelle in der Elektronenverteilung), welche durch plötzliche Ionisation des Moleküls entstanden ist, in der Lage ist, sich in wenigen hundert Attosekunden von einer Seite des Moleküls zur anderen zu bewegen. Diese sogenannte Ladungsmigration mag wiederum die nachfolgenden chemischen Prozesse, z.B. die Dissoziation, beeinflussen, was als „charge-directed reactivity“ (ladungsgesteuerte Reaktivität) bezeichnet wird. Ein erster Schritt diese Vorhersagen experimentell zu nutzen wird sein, ultraschnelle Elektronenbewegungen in Molekülen experimentell sichtbar zu machen. Die Experimente, welche in den neuen Attosekundenlaboratorien am Max-Born-Institut durchgeführt und in Physical Review Letters <http://prl.aps.org/pdf/PRL/v111/i3/e033001> veröffentlicht wurden, belegen, dass dies nun erstmals gelungen ist.

Die kürzesten Laserimpulse, welche Wissenschaftler heutzutage erzeugen können, haben eine Impulsdauer von nur 50 - 500 as. In einem Prozess, der „Erzeugung höherer Harmonischer“ (high-order harmonic generation (HHG)) genannt wird, wird ein Edelgas von einem Nahinfrarotlaser ionisiert. Das freigesetzte Elektron wird im Laserfeld in Feldpolarisationsrichtung erst vom Ion weg und danach zum Ion zurück beschleunigt. Hierbei kommt es zur Rekombination und die aufgebrauchte Energie, welche benötigt wurde um das Gas zu ionisieren und das freie Elektron zu beschleunigen, wird in Form von Photonen freigesetzt. Die Photonenenergie liegt typischerweise im Bereich von 10 - 100 eV und entspricht einem Vielfachen der Photonenenergie des Nahinfrarotlasers. Da die Periode des Nahinfrarotfeldes im Bereich von nur wenigen Femtosekunden liegt und der Rekombinationszeitpunkt für alle freigesetzten Elektronen etwa gleich ist, kann man optische Impulsdauern im Attosekundenbereich erreichen.

Während Femtosekundenimpulse erfolgreich genutzt wurden um Strukturänderungen in Molekülen zu studieren, benötigt man Attosekundenimpulse um die schnellen Bewegungen von Elektronen in Molekülen zu verfolgen. Nachdem diese ultrakurzen optischen Impulse im Jahr 2001 zum ersten Mal beobachtet worden sind, wurden diese für Studien von verschiedensten

Research Highlights

Attosecond electron dynamics in molecules

One of the visions guiding current research on the application of attosecond ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) laser pulses to molecules is the possibility of controlling molecular processes by manipulating valence electrons on attosecond to few femtosecond ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) timescales. As predicted by several theoretical works in the last decade, the ultrafast removal (on attosecond timescales) of electrons from molecules may lead to ultrafast migration of the hole in the charge density along the molecular skeleton, potentially influencing the subsequent chemistry of the molecule in what is sometimes called “charge-directed reactivity”. An important and necessary challenge that needs to be overcome in order to observe charge migration is to prove that attosecond pulses can observe this process. In a study that was published in Physical Review Letters <http://prl.aps.org/pdf/PRL/v111/i3/e033001>, experimental results are published that were obtained in the new attosecond laboratories at the Max Born Institute and that provide the first evidence for this.

Attosecond laser pulses are the shortest laser pulses that scientists are able to produce. Using a process called high-order harmonic generation (HHG), it has become possible to produce pulses with a duration of 50-500 as. In HHG, an atomic or molecular gas is typically exposed to a near-infrared driving laser pulse that is intense enough to ionize the gas. The electrons that are thereby set free experience the oscillatory electric field of the driving laser, which pulls them away from their parent ion, and then, a short time later (when the laser electric field has changed sign), accelerates them back towards this ion. In the course of the electronion recollision that then occurs, the electron may be reabsorbed and all the energy that has been invested in the ionization and laser acceleration of the electron may come available via the formation of high energy photons, with an energy that is typically in the 10-100 eV range. Since all electrons that participate in the process are set free and recombine more or less simultaneously, these bursts of high energy photons have a duration that is merely a small fraction of the duration of one optical cycle of the driving laser. Since this duration is just a few femtoseconds for a near-infrared driving laser pulse, the formation of attosecond pulses is inevitable.

Attosecond pulses are a wonderful tool for studying the time-dependent motion of electrons. Whereas the motion of atomic centers is most appropriately studied with femtosecond laser pulses, making movies of electronic motion requires a time resolution in the attosecond domain. Therefore, since their discovery in 2001, many scientists have turned their attention

MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

Systemen wie Atomen, Molekülen und Festkörpern eingesetzt. In vorangegangenen Arbeiten des MBI-Teams wurden bereits Attosekundenimpulse für Pumpe-Probe-Untersuchungen an Molekülen genutzt. Es wurden erste experimentelle Hinweise auf die Kopplung von Elektronen- und Kernbewegungen auf Attosekunden- und Femtosekundenzeitskalen sowie die Auswirkungen der Verschränktheit in Multielektronensystemen gefunden. Es war bisher allerdings nicht möglich reine Elektronendynamiken in neutralen Molekülen mit Attosekundenimpulsen zu studieren.

Die neuesten Ergebnisse zur erfolgreichen Beobachtung von molekularen Elektronendynamiken basieren auf „dynamischer Ausrichtung“. Diese Technik wurde schon vor einiger Zeit vom MBI-Team genutzt und ist mittlerweile ein fester Bestandteil von vielen Experimenten, welche die Struktur und Dynamiken von und in Molekülen untersuchen. Wird ein Molekül Laserstrahlung ausgesetzt, die zwar zu schwach ist das System zu ionisieren, aber stark genug um im Molekül einen Dipol zu induzieren, so richtet sich die polarisierbare Molekülachse entlang der Laserpolarisationsachse aus. Mit Hilfe dieser dynamischen Ausrichtung gelingt es Prozesse, welche im Molekülbezugssystem stattfinden, im Laborbezugssystem zu studieren.

In den kürzlich veröffentlichten Experimenten, die vom MBI-Team zusammen mit Kollegen aus Lyon (Frankreich) und Lund (Schweden) durchgeführt wurden, konnte dieser oszillierende Dipol direkt beobachtet werden. Das Molekül wurde durch einen Attosekundenimpulszug ionisiert, der zum Feld des dipolinduzierenden Nahinfrarotlasers synchronisiert war. Je nach Phase zwischen Pumpe- und Probeimpuls war die Ionisationswahrscheinlichkeit deutlich verschieden. Waren die Blitze des Attosekundenimpulszugs synchronisiert zum Nulldurchgang des Nahinfrarotfeldes (*Abbildung 1 (a)*), so war die Ionisationsausbeute kleiner als wenn die Blitze mit den Extrema des Nahinfrarotfeldes synchronisiert wurden (*Abbildung 1 (b)*). Der Grund hierfür ist die Energie- und Impulserhaltung. Vorausgesetzt die Photonenenergie im Attosekundenblitz ist ausreichend, ist es deutlich einfacher Elektronen aus dem Molekül zu lösen, welche sich dicht an den atomaren Kernen bewegen. Diese Aufenthaltswahrscheinlichkeit wird aber durch das Nahinfrarotfeld periodisch verändert (*Abbildung 1 (c)*), was zu einer Modulation des Ionisationswechselwirkungsquerschnittes führt (*Abbildung 2*).

Das Pumpe-Probe-Experiment wurde für verschiedene Moleküle durchgeführt, wobei sich der o.g. Effekt linear mit der Polarisierbarkeit der Moleküle veränderte (*Abbildung 2*). Die experimentelle Anordnung kann als erste Implementierung der Stark-Spektroskopie auf Attosekundenzeitskala interpretiert werden. Mit dieser Methode wird die Antwort des Moleküls auf ein äußeres elektrisches Feld optisch abgefragt. Zukünftige Experimente des MBI-Teams werden sich mit transientser Ab-

to the application of attosecond pulses to studies of electron dynamics in atomic, molecular and condensed phase systems. In previous studies by the MBI-team on the application of attosecond pump-probe spectroscopy to a molecular system, first evidence was obtained for coupling of electronic and structural dynamics on attosecond to few-femtosecond timescales, as well as for entanglement of multiple electrons. However, the use of attosecond pulses for observing purely electronic motion in a neutral molecule thus far remained elusive.

The recently published successful observation of electron dynamics in neutral molecules, which were performed in the framework of an international collaboration with researchers from the universities of Lyon (France) and Lund (Sweden), bases itself on the technique of “dynamic alignment” that the MBI-team pioneered a little over a decade ago, and that has become a preparation step for many experiments addressing the structure and time-dependent dynamics in molecules. In a dynamic alignment experiment, a molecule is exposed to a laser pulse that is too weak to ionize the molecule, but strong enough to induce a dipole in the molecule. The interaction of the induced dipole with the laser electric field leads to a situation where the molecules align their most polarizable axis along the laser polarization axis. This allows researchers to determine how processes that are observed in the laboratory relate to processes that occur in the molecular frame.

In these recent experiments, the oscillating dipole that causes the “dynamic alignment” effect was directly observed, by ionizing the molecule with a train of attosecond laser pulses that was synchronized to the field oscillations of a near-infrared laser that induced the dipole. For a series of molecules, it was observed that the ionization probability by the attosecond pulses was markedly different at times when the oscillatory electric field of the near-infrared laser induced a dipole (*Figure 1 (b)*) and at times where this dipole was momentarily zero (*Figure 1 (a)*). The differences in the electron density in these two cases are shown for the case of molecular nitrogen in *Figure 1 (c)*. The reason for the different ionization probabilities is that the absorption of light requires that both energy and momentum need to be conserved, in the case of the high energy photons in the attosecond pulse strongly favoring times when the electron that is to be removed is relatively close to one of the atomic centers.

The experiment was performed for a series of molecules (*Figure 2*), and showed that the observed effect scaled nearly linearly with the polarizability of the molecule under investigation. As described in the publication, the experiment may be viewed as an attosecond timescale implementation of the technique of molecular Stark spectroscopy, where the dependence of molecular photoabsorption on the presence of an external electric field is investigated. In the future, the team will try to

MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

sorption mit Attosekundenzeitauflösung beschäftigen. Außerdem sollen optische Attosekundenimpulse genutzt werden, um intrinsische Ladungsbewegungen in Molekülen, welche nicht durch ein externes Laserfeld induziert wurden, zu beobachten.

measure the absorption spectrum with attosecond time resolution and will try to use the attosecond pulses to observe charge redistribution that is not driven by an external laser, but that is intrinsic to the molecule.

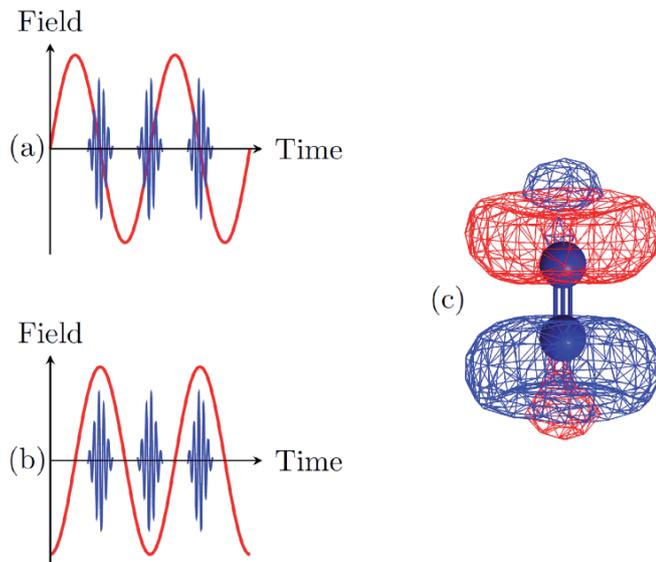


Abb. 1:

Der Attosekundenimpulszug (blau) ist entweder synchronisiert mit den Nulldurchgängen des Nahinfrarotfeldes (rot) (a) oder zu dessen Extrema (b). In diesem Fall wird das Molekül ionisiert, wenn seine Elektronendichteverteilung vom Nahinfrarotfeld verändert wurde. Diese Veränderung der Elektronendichte ist in (c) für molekularen Stickstoff gezeigt. Hierbei bedeutet rot, dass sich die Dichte in diesem Teil des Moleküls erhöht hat, während blau auf das Gegenteil deutet.

Fig. 2

Synchronization of the near-infrared (NIR) field (red line) with the attosecond pulse train (APT, blue line). (a) The APT is synchronized to the zero crossings of the NIR field, while in (b) it is synchronized to the NIR field extrema. In this situation the electron density is different (compared to the undisturbed molecule) when the APT ionizes the molecule. The change of the electron density in the case of molecular nitrogen is plotted in (c). The red color denotes sites of increased density while blue shows the opposite.

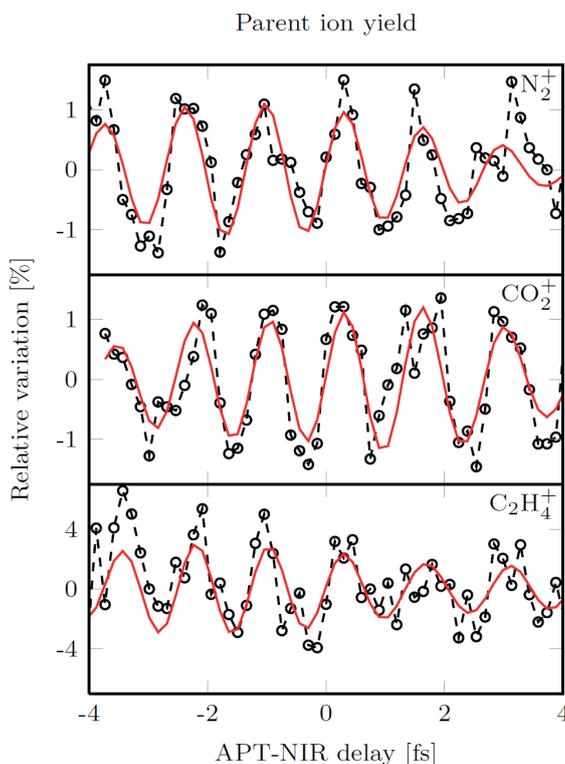


Abb. 2:

Gemessene Variation der Ionisationsausbeute als Funktion der Pumpe-Probe-Verzögerung (schwarz). Die Moleküle (molekularer Stickstoff, Kohlenstoffdioxid und Ethen) wurden unter Einwirkung eines Nahinfrarotfeldes durch einen Attosekundenimpulszug ionisiert. Die rote Linie ist das Ergebnis einer Fourieranalyse nahe der doppelten Frequenz des Nahinfrarotlasers.

Fig. 2

The observed variation of the parent ion yield as a function of pulse delay. The molecules (molecular nitrogen, carbon dioxide and ethylene) were under the influence of a NIR field when ionized by an APT. The modulation increases with increasing polarizability. The result of Fourier filtering around the double frequency of the NIR field is indicated by the red line.

Kontakt: Marc Vrakking, Tel. 1200, Christian Neidel, Tel. 1238

MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

Forschungsergebnisse

Eine Million mal heller als die Sonne - weißes Licht als extrem kurzer Impuls

Wissenschaftler der Leibniz Universität Hannover, des Weierstraß-Instituts für Angewandte Analysis und Stochastik sowie des Max-Born-Instituts für Nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie haben eine neue Methode für die Erzeugung optischer Weißlichtpulse im sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich entwickelt. Diese Pulse können zu extrem kurzer zeitlicher Dauer komprimiert werden, die nur noch eine einzige Oszillation der Lichtwelle ausmacht.

Die Erzeugung von weißem Licht aus spektral schmalbandiger Laserstrahlung ist einer der faszinierendsten Prozesse in der nichtlinearen Optik. Dieser Mechanismus hat vielfältige Verwendung in der Spektroskopie, in der Messtechnik und in bildgebenden medizinischen Verfahren gefunden. Bei vergleichsweise geringen Lichtleistungen bieten Lichtquellen, die auf optischen Fasern beruhen, exzellente räumliche Kohärenzeigenschaften und eine kleine Strahlungsfläche. Weißlicht-Strahlungsquellen können daher eine spektrale Strahlungsdichte erreichen, die sie millionenfach heller als die Sonne machen.

Die spektralen Kohärenzeigenschaften solcher Strahlungsquellen sind hingegen vergleichsweise bescheiden. Das bedeutet, dass man das Licht der Weißlichtquelle zwar gut auf eine sehr kleine Fläche fokussieren kann, dass aber gleichzeitig eine zeitliche Konzentration der Pulsenergie in ein kleines Zeitintervall unmöglich ist. In der aktuellen Ausgabe der Fachzeitschrift Physical Review Letters [PRL 110, 233901 (2013)] <http://prl.aps.org/pdf/PRL/v110/i23/e233901> stellen Ayhan Demircan, Shalva Amiranashvili, Carsten Brée und Günter Steinmeyer eine neue Methode vor, um dieses grundsätzliche Problem von Laser-Weißlichtquellen zu umgehen. Dieser Vorschlag sieht vor, zwei Lichtimpulse bei verschiedenen Wellenlängen für die Weißlichterzeugung in einer optischen Faser zu verwenden. Hierzu muss man die Wellenlängen der Pulse so wählen, dass sie mit nahezu gleicher Geschwindigkeit in der Faser propagieren. Ähnlich einem Surfer, der eine Welle abpasst, können die beiden Pulse dann eine langlebige Bindung eingehen, die zu einer intensiven nichtlinearen Wechselwirkung führt. Diese Wechselwirkung füllt die spektrale Lücke zwischen beiden Pulsen schnell mit kohärent erzeugten neuen Spektralkomponenten aus.

Simulationsrechnungen zeigen auf, dass das so erzeugte Superkontinuum direkt ohne weitere Kompressionsmaßnahmen die Erzeugung von Pulsen mit zwei optischen Zyklen Dauer ermöglicht. Durch die Verwendung einer geeigneten Dispersionskompensation sollte sogar die Erzeugung eines Ein-Zyklus-Pulses möglich sein. Im Gegensatz zur Einfarben-

Research Highlights

A Million Times Brighter than the Sun - White-Light as an Extremely Short Pulse

Researchers from the Leibniz University Hannover, the Weierstraß Institute for Applied Analysis and Stochastics as well as the Max Born Institute for Nonlinear Optics and Short Pulse Spectroscopy have developed a new concept to generate optical white-light pulses in the visible and near infrared. These pulses can be compressed to extremely short pulse duration, comprising only a single oscillation of the optical carrier field.

The generation of broadband white-light supercontinua from spectrally narrow input laser light is one of the most fascinating processes in nonlinear optics and found many applications in spectroscopy, metrology and biomedical imaging. Despite of rather modest average output powers, the source area of fiber-based whitelight sources is extremely small, and they exhibit excellent spatial coherence properties like a laser. These favorable properties make fiber-based supercontinua a million times brighter than the sun.

However, the spectral coherence of such white-light sources is much poorer than the spatial one. While the light can be spatially refocused into a small spot, a similar concentration of energy along the temporal coordinate is typically impossible. In the current issue of Physical Review Letters [PRL 110, 233901 (2013)], <http://prl.aps.org/pdf/PRL/v110/i23/e233901>, Ayhan Demircan, Shalva Amiranashvili, Carsten Brée, and Günter Steinmeyer propose a novel method to circumvent this limiting problem of white-light sources. Rather than only launching light at one narrow wavelength region into the fiber, they demonstrate that a carefully selected combination of two pulses at well-separated wavelengths gives rise to fully compressible white-light generation inside the same type of nonlinear optical fiber. The trick is to launch both pulses at nearly identical velocities, like a surfer catching a wave, to the end of inescapably locking both components together. The nonlinear interaction within this two-color optical pulse then quickly fills the spectral gap in between with newly generated coherent radiation, giving rise to coherent white light generation that can be re-compressed into a short pulse.

The simulations indicate that it should be possible to directly generate optical pulses that only comprise two optical cycles of the carrier wave. Additionally, using linear dispersion compensation, even synthesis of single-cycle optical pulse should be possible. In contrast to previous methods, the resulting spectra are relatively smooth, which opens new applications, e.g., for biomedical imaging. In conclusion, the novel two-pulse white-light generation enables a wealth of previously impossible applications for these fascinating bright light sources.

Erzeugung von Weißlicht-Superkontinua zeigen die Spektren der neuen Quelle einen relativ glatten Intensitätsverlauf, was sie besonders interessant für neue Anwendungen in bildgebenden medizinischen Verfahren macht. Insgesamt ergeben sich somit vielfältige vormals unmögliche Anwendungen dieser faszinierenden neuen hellen Weißlichtquelle.

Kontakt: G. Steinmeyer, Tel: 1440

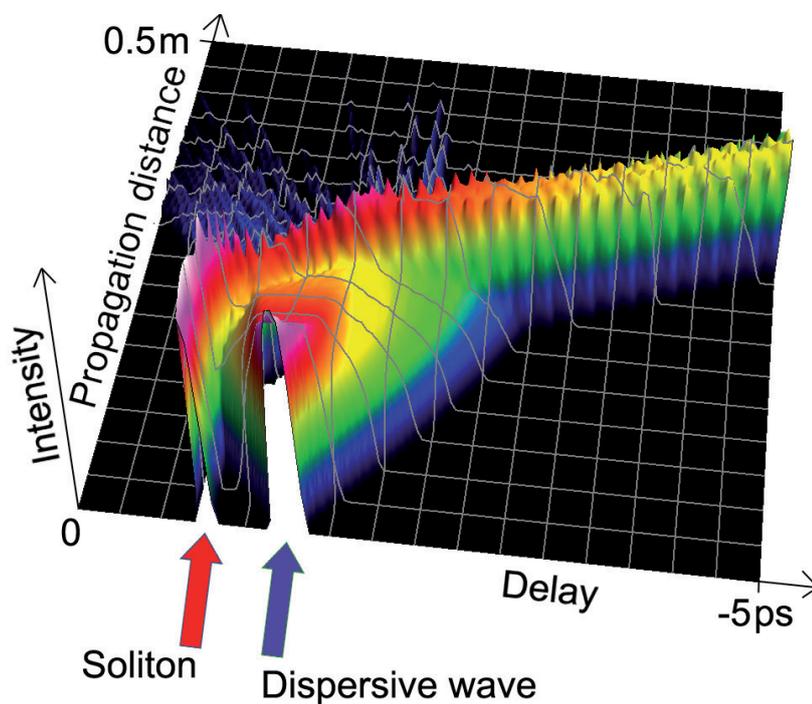
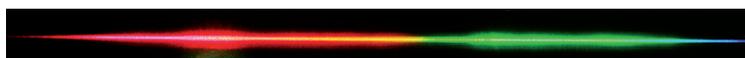


Fig. 1:

Numerische Simulationen der Zweifarben-Anregung der faserbasierten Weißlichterzeugung. Ein Solitonenimpuls wird mit geringer zeitlicher Verzögerung zusammen mit einem Puls im normalen Dispersionsbereich in eine Glasfaser eingekoppelt. Hierbei kann das Soliton sein zeitliches Profil erhalten, bis es auf die sich langsam zeitlich verbreiternde dispersive Welle trifft. Sobald beide Impulse sich begegnen, sind sie zeitlich aneinander gekoppelt und wechselwirken sodann heftig miteinander. Lediglich ein winziger Teil der dispersiven Welle kann die Barriere durchqueren, die durch das Soliton aufgebaut wird.

Fig. 1:

Numerical simulations of two-color excitation of white-light generation in a fiber. Two pulses, namely a soliton in the anomalous dispersion region and a dispersive wave in the normal dispersion region are launched at a slight delay into a fiber. While the soliton initially maintains its pulse shape, the dispersive wave quickly spreads out in time. Once both pulses start to interact, both pulses remain locked to each other and start to heavily interact. Only a marginal part of the dispersive way can actually penetrate the barrier imposed by the soliton.



MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

Forschungsergebnisse

Überleben eines Rydbergatoms in einem intensiven Laserfeld

Bei einem hochangeregten Atom, auch Rydbergatom genannt, befindet sich eines der Elektronen, das Rydbergelektron, in einem Zustand, in dem es nur noch sehr schwach gebunden ist und sich hauptsächlich in großem Abstand vom einfach geladenen ionischen Rumpf befindet. In einer klassischen Beschreibung stellt man sich vor, dass das Rydbergelektron den ionischen Rumpf umkreist, wobei die Umlaufzeiten ähnlich, beziehungsweise meistens deutlich länger sind als die Pulsdauern von typischerweise 40fs verfügbarer intensiver Laser. Wie empfindlich diese Rydbergatome auf äußere Störungen reagieren, lässt sich daran erkennen, dass bereits ein statisches elektrisches Feld von wenigen 100V/cm ausreicht, sie zu ionisieren, das heißt, das Rydbergelektron wird unwiederbringlich aus dem Atomverbund entfernt.

Spannend ist nun die Frage, was passiert, wenn ein fragiles Rydbergatom einem intensiven Laserpuls ausgesetzt wird, in dem kurzzeitig elektrische Feldstärken bis zu einer Milliarde V/cm herrschen. Die Fragestellung mag einem paradox erscheinen, da man bei solchen Feldstärken zunächst nicht erwartet, dass das Elektron im Atomverbund überlebt. Sie ist jedoch eingebettet in das aktuelle Thema, unter welchen Umständen Atome sich der Ionisation widersetzen können, beziehungsweise, ob das Atom gar durch das Laserfeld selbst stabilisiert werden kann. Seit dem Aufkommen intensiver Laserstrahlung wird dieses Thema hauptsächlich theoretisch diskutiert. Im Gegensatz dazu sind experimentelle Untersuchungen bis auf ganz wenige erfolgreiche Arbeiten bei gemäßigten Intensitäten Mangelware. Ein zentrales Problem der experimentellen Untersuchungen ist der Nachweis, dass das überlebende Atom wirklich mit der maximalen Intensität des Laserpulses wechselgewirkt hat. Die im Folgenden beschriebene Forschungsarbeit, die in Physical Review Letters veröffentlicht und von den Editoren des Journals mit einer Leseempfehlung versehen wurde, zeigt nicht nur, dass Rydbergatome hohe Laserintensitäten „überleben“, sondern sie demonstriert vor allem eindeutig, dass die Atome tatsächlich den hohen Intensitäten ausgesetzt waren.

Im Experiment regen wir zunächst mit einem ersten Laserpuls moderater Intensität in einem stark gebündelten Strahl von neutralen Heliumatomen diese in Rydbergzustände an. Die angeregten neutralen Atome bewegen sich danach ungestört bis zu einem Detektor, wo sie einzeln nachgewiesen werden. Da wir gleichzeitig auch ihren Auftreffort registrieren, stellen wir fest, dass die angeregten Heliumatome durch eine Kraft abgelenkt werden, die nur während des Laserpulses wirkt. Die örtliche Verteilung der Atome auf dem Detektor folgt einem Muster, das die Intensitätsverteilung des Laserlichts im Fokus wider-

Research Highlights

Survival of a Rydberg atom in an intense laser field

A highly excited atom is called Rydberg atom. One electron, the Rydberg electron, is in a weakly bound state, where it predominantly resides at large distances from the singly charged ionic core. From a classical point of view it orbits the ionic core with an orbital period, which is equivalent or mostly larger than the typical pulse duration of intense lasers on the order of 40fs. One can estimate the sensitivity of a Rydberg atom to external perturbations by considering the fact that a Rydberg atom, which is exposed to a small electric field of a few 100V/cm, immediately fieldionizes, i.e., the electron is irreversibly removed from the atom.

What happens now if we submit a fragile Rydberg atom to an intense laser field, where field strengths of up to one billion V/cm prevail for a short time? At first glance, the question seems like a paradox given that one might expect the atom to immediately ionize at these large field strengths. However, the question is part of a larger research effort concerning the stability and stabilization of atoms in strong laser fields, which has been discussed since the advent of intense lasers. In contrast to numerous theoretical investigations experimental work is scarce except for an important work on stabilization at moderate laser intensities. A major obstacle in experimental work is how to prove that the atom has indeed interacted with the maximum intensity in laser pulse. In the following we present the results of our experimental investigations, which have been published in Physical Review Letters marked as editor's choice for reading. We show that highly excited Rydberg atoms not only survive strong laser fields with field strengths as high as 1 billion V/cm with high probability, but additionally, that the surviving atoms have encoded in their kinematics the intensity they have interacted with.

In the experiment a first laser pulse with moderate intensity excites Rydberg states in a collimated beam of neutral Helium atoms. The excited atoms move towards a detector, where they are individually detected. Since we also measure the position, where they hit the detector, we observe, that the excited atoms are deflected by a force, which acts only during the laser pulse. The spatial distribution of He atoms on the detector follows the pattern of the intensity distribution of the laser light in the focus region. This process has been investigated earlier by our group and is known to be the result of a ponderomotive force on the atom, which is very strong at the intensities applied in the experiment, see Fig. 1(a).

About 500fs later a second intense focused laser pulse interacts with the Rydberg atoms. If the atoms are ionized by the pulse, we observe a decrease in the signal. If they survive the

MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

spiegelt. Der bereits aus unseren früheren Untersuchungen bekannte Ablenkprozess lässt sich mit Hilfe der ponderomotiven Kraft auf das Atom erklären, die bei den hohen Intensitäten sehr stark ist, siehe *Abbildung 1(a)*.

Zu einem etwas späteren Zeitpunkt lassen wir nun einen weiteren, sehr intensiven, fokussierten Laserpuls mit den Rydbergatomen wechselwirken. Werden die Atome daraufhin ionisiert, so macht sich das in einer Abnahme des Signals am Detektor bemerkbar. Überleben sie dagegen, werden sie unverändert nachgewiesen, dabei allerdings durch die ponderomotive Kraft, die proportional zur Laserintensität ist, noch einmal um eine zusätzliche Strecke abgelenkt, wie man in *Abbildung 1(b)* sieht. In *Abbildung 1(c)* ist schließlich die Differenz der beiden Signale zu sehen. Analysiert man die Daten genauer, findet man, dass das angeregte Elektron während des Pulses zwar kräftig durchgeschüttelt wird, aber bei nur etwa jedem zehnten Atom führt dieses auch zur Ionisation. Aus der gemessenen Ablenkung kann gefolgert werden, dass die überlebenden Rydbergatome einer Laserintensität ausgesetzt waren, die zwischen 60 und 95% der gemessenen Maximalintensität liegt. Durch einen genauen Vergleich der experimentellen Daten mit aufwendigen quantenmechanischen Rechnungen (A. Saenz, HU Berlin) und klassischer Trajektorienrechnungen kann man die ablaufenden Prozesse noch genauer verstehen. Am erfolgreichsten widersetzen sich solche Rydbergatome der Ionisation, bei denen das Elektron auch durch Einwirkung des Laserfeldes nicht in die Nähe des ionischen Rumpfes gelangt. Dadurch vermeiden sie gerade die Situation, die mit der höchsten Ionisationswahrscheinlichkeit verbunden ist. Andererseits überleben auch solche Rydbergatome, bei denen die Umlaufzeit des Elektrons klein ist gegenüber der Pulsdauer des Lasers. In diesem Fall deutet die niedrige Ionisationswahrscheinlichkeit daraufhin, dass eine Stabilisierung des Atoms im Laserfeld stattfindet, bei der die Wahrscheinlichkeit, das Elektron in der Nähe des ionischen Rumpfes zu finden, durch die große Auslenkung des Elektrons im Laserfeld, stark reduziert ist.

Kontakt: U. Eichmann, Tel. 1371

Abb. 1 Verteilung angeregter Heliumatome auf dem ortsempfindlichen Detektor. Die Anzahl der gemessenen Atome ist farblich kodiert. Die Ausbreitungsrichtung des Laserpulses ist in Richtung positiver z-Achse. Die Ablenkung der Atome erfolgt senkrecht zur Strahlachse, da in dieser Richtung der größte Intensitätsgradient vorliegt, d.h., die größte ponderomotorische Kraft wirkt. **(a)** Verteilung angeregter Helium-Rydbergatome nach Wechselwirkung mit einem Laserpuls der Intensität $I_1=2.7 \cdot 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$ 500fs später eingestrahlt **(b)** Überlebende Rydbergatome nach Wechselwirkung mit dem zweiten, elliptisch polarisierten Laserpulse mit der Intensität $I_2=3.8 \cdot 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$ **(c)** Differenz der Verteilungen in (a) und (b). Diese zeigt klar die Bereiche, in denen eine zusätzlich Ablenkung stattgefunden hat.

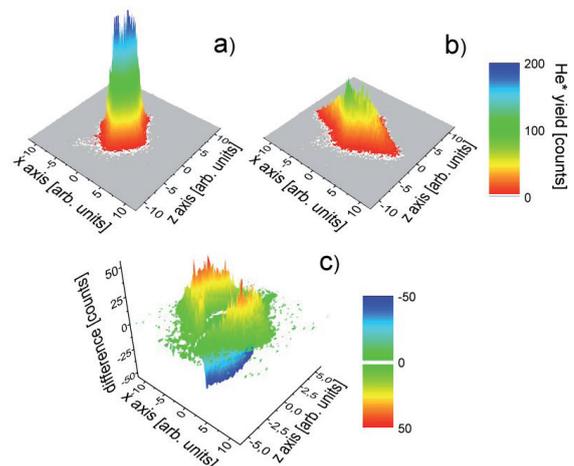
the signal does not drop. However, due to the ponderomotive force, which is proportional to the intensity of the laser pulse, the atoms are again deflected by an additional distance as can be seen in *Fig. 1(b)*. In *Fig. 1(c)* we show the difference of the two measurements, which clearly shows the additional deflection. Inspecting the data closer we find that the electron is heavily shaken by the laser pulse, however, depending on the intensity, roughly only every tenth atom is ionized. From the measured deflection we deduce that the surviving Rydberg atoms have interacted with laser intensities between 60% and 95% of the maximum measured laser intensity. A very detailed comparison between quantum mechanical calculations (A. Saenz, HU Berlin) and classical trajectory calculations allows for further insight into the process. We find that particularly those Rydberg atoms survive the most, where the electron, even under the influence of the strong laser field, has the smallest overlap with the ionic core, where the ionization probability is the largest. Moreover, we find survival even of those atoms, where the orbital period is smaller than the laser pulse duration. In these cases the reduced overlap with the ionic core can be attributed to a stabilization of the atom in the laser field.

U. Eichmann, A. Saenz, S. Eilzer, T. Nubbemeyer, W. Sandner
Phys. Rev. Lett. 110, 203002 (2013)

Observing Rydberg Atoms to Survive Intense Laser Fields

<http://prl.aps.org/pdf/PRL/v110/i20/e203002>

Fig. 1 Distributions of excited He atoms on the position-sensitive detector. The number of excited atoms impinging on the detector is color coded. The laser propagation direction is towards the positive z axis. The deflection occurs perpendicular to the propagation direction, where the largest intensity gradient exists, **(a)** Excited He-atom distribution on the detector for a single laser pulse with an intensity of $I_1=2.7 \cdot 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$ **(b)** Surviving excited He-atom distribution on the detector after applying a second elliptically polarized laser with an intensity $I_2=3.8 \cdot 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$ and a time delay of about 500 fs. **(c)** The difference of the He-atom distributions in (a) and (b). It clearly shows the regions where additional deflection has occurred.



Forschungsergebnisse

Beobachtung des Charakters ultraschneller lösungsmittelunterstützter Zustandsänderungen des angeregten Zustands von 1-Naphthol

Eine Säure ist eine Substanz die Protonen abgeben kann. Azidität wird charakterisiert durch den pK_a -Wert [1]: Salpetersäure (HNO_3) ist eine starke Säure mit $pK_a = -1.3$, Essigsäure ist schwächer mit $pK_a = 4.8$, und Wasser ist eine extrem schwache Säure mit $pK_a = 15.7$. Photosäuren sind eine spezielle Art von Molekülen, deren Azidität nach Absorption von Licht sehr stark ansteigt. Obwohl das Phänomen von Photoazidität schon lange etabliert ist, sind die relevanten molekularen Eigenschaften, insbesondere die Rolle von unterschiedlichen angeregten Zuständen noch immer nicht identifiziert. Dieses Problem wurde jetzt an den Beispielen 1-Naphthol und 2-Naphthol erläutert. Bei 2-Naphthol verändert sich der pK_a -Wert von 9 im elektronischen Grundzustand S_0 auf einen Wert von 3 im elektronisch angeregten Zustand S_1 , d.h. die Azidität ändert sich von der von HCN in die von HOCN. Geht man davon aus, dass sich die Ladungsverteilung infolge der elektronischen Anregung entsprechend verändert, kann auch bei 1-Naphthol die gleiche Säurekonzentration erwartet werden. Wird allerdings 1-Naphthol in Wasser gelöst, erhält man im angeregten Zustand einen pK_a -Wert von 0,5, d.h. eine Azidität vergleichbar mit der von HSCN. Dieses klassische spektroskopische Dilemma wird der sich ändernden elektronischen Konfiguration im angeregten Zustand des 1-Naphthol zugeschrieben, die durch die Polarität der Lösungsmittel hervorgerufen wird. In schwach polarisierten Lösungen verfügt das 1-Naphthol nämlich im angeregten S_1 -Zustand über eine ähnliche Elektronenstruktur wie das 2-Naphthol. In polaren Lösungen (Wasser, Alkohole, Dimethylsulfoxide) wird dagegen ein Sprung vom elektronisch angeregten Zustand 1L_b im 1-Naphthol zu einem stärker polarisierten 1L_a -Zustand erwartet [2]. Diese dynamischen Übergänge in den elektronischen Zuständen konnten bislang aber noch nicht experimentell in Echtzeit nachgewiesen werden.

Forschern der École Polytechnique Fédérale de Lausanne, des Max-Born-Instituts für Nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie (Berlin) und der Yale University (New Haven, CT) gelang es nun erstmals, die zeitlichen Dimensionen in diesem klassischen Fall zu bestimmen. Es zeigte sich, dass die durch die Lösungsmittelpolarität bewirkten Übergänge in den elektronischen Zuständen des 1-Naphthol extrem schnell ablaufen. Mittels der zeitabhängigen Fluoreszenz-Anisotropie konnte nachgewiesen werden, dass die Übergänge zwischen den elektronischen Konfigurationen 1L_b zu 1L_a im 1-Naphthol in polarisierten Dimethylsulfoxid-Lösungen auf einer Zeitkonstante von 60 Femtosekunden ablaufen (das entspricht 0,000000000000060 Sekunden). Gleichzeitig werden beim Übergang zwischen den Stufen 1L_b zu 1L_a die Wasserstoffbrü-

Research Highlights

Revealing the Ultrafast Nature of the Solvent-Assisted Electronic Excited State Switching in 1-Naphthol

An acid is a compound that provides protons. Acidity is usually characterized by the pK_a -value [1]: nitric acid (HNO_3) is a strong acid with $pK_a = -1.3$, acetic acid is weaker with $pK_a = 4.8$, and for the extremely weak acid water $pK_a = 15.7$. Photoacids are special molecules that become strongly acidic upon absorption of light. While this general concept of photoacidity is well established, insight into the relevant molecular properties, in particular the role of different excited states has remained elusive. This issue has now been addressed for the aromatic alcohols 1-naphthol and 2-naphthol. For 2-naphthol the pK_a -value changes from 9 in the electronic ground S_0 -state to about 3 in the electronic excited S_1 -state, i.e. the acidity changes from that of HCN to HOCN. Based on estimated charge distribution changes caused by electronic excitation, a similar shift in acidity can be expected for 1-naphthol. However, when 1-naphthol is dissolved in water, a pK_a -value of 0.5 in the electronic excited state is found, i.e. an acidity comparable to that of HSCN. This classic spectroscopic dilemma has been ascribed to a solvent polarity driven change of the electronic configuration in the excited state of 1-naphthol. In weakly polar solvents 1-naphthol has a similar S_1 -state electronic structure as 2-naphthol, in polar solvents (water, alcohols, dimethylsulfoxide) a switching from the electronic excited state 1L_b to a more polar 1L_a -state is thought to occur in 1-naphthol [2]. This dynamic electronic state level crossing has so far not been experimentally confirmed in real-time.

In a collaborative effort, researchers from the Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, the Max Born Institute for Non-linear Optics and Short Pulse Spectroscopy (Berlin) and Yale University (New Haven, CT) have - for the first time - determined the time scale for this classic case. The solvent-polarity driven level crossing in 1-naphthol turns out to occur extremely fast. As evidenced by time-dependent fluorescence anisotropy 1-naphthol in the polar solvent dimethylsulfoxide switches from the 1L_b to the 1L_a electronic state configuration with a 60 femtosecond time constant (that is, 0.000000000000060 second). At the same time, a strong increase in the hydrogen bond strength accompanies this 1L_b to 1L_a level crossing, as femtosecond infrared spectroscopy experiments on 1-naphthol reveal. Our combined experimental and theoretical study shows that the apparent discrepancy in photoacidic behaviour of 1-naphthol and 2-naphthol is already in effect before any solvent shell rearrangements can occur.

These findings will be of interest to any chemist, involved with experiments or theory of dynamical changes of electronic states, typically called non-adiabatic level crossings. The-

MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

ckenbindungen deutlich stärker, wie die Femtosekunden Infrarotexperimente zu 1-Naphthol belegten. Unsere experimentell wie theoretisch angelegte Studie konnte somit zeigen, dass das widersprüchliche Verhalten der Photosäuren 1-Naphthol und 2-Naphthol bereits auftritt, bevor es überhaupt zu einer Umordnung der Lösungsmittelhülle kommt.

Diese Ergebnisse sind für alle Chemikerinnen und Chemiker von Interesse, die sich mit Experimenten oder der Theorie dynamischer Übergänge elektronischer Zustände, üblicherweise als nicht-adiabatische Übergänge bezeichnet, befassen. Die nun gewonnenen Resultate für 1-Naphthol stellen ein typisches Beispiel für solche lösungsmittelunterstützten, nicht-adiabatischen Übergänge dar. Sie entsprechen dabei auf dem Fachgebiet der Fotochemie der flüssigen Phase eher der Regel als der Ausnahme. Viele Untersuchungen, die auf den modernsten Berechnungen solcher Dynamiken fußen, können nun weiter vorangetrieben werden. Die Berechnungen zu elektronisch angeregten Strukturen lassen davon ausgehen, dass es zu einer erheblichen Mischung verschieden angeregter Zustände kommt, die durch die Polarität des sie umgebenden Lösungsmittels bestimmt wird. Eine Herausforderung wird nun darin bestehen, den dynamischen Charakter der Lösungsmittelhüllen in einen kombinierten QM/MM-Ansatz (quantenmechanisch/molekülmechanisch) zu übertragen, mit dessen Hilfe ultraschnelle nicht-adiabatische und lösungsmittelunterstützte Übergänge genau beschrieben werden können.

se results on 1-naphthol offer a clear-cut example of solvent assisted non-adiabatic transitions, which are probably the rule rather than the exception in liquid phase photochemistry. In addition, the results will propel many activities using state-of-the-art calculations of such dynamics. One aspect is that the electronic excited state structure calculations suggest a significant amount of excited state level mixing, controlled by the polarity of the surrounding solvent. A challenge will be to implement the dynamical nature of the solvent shells into a combined QM/MM description with which such an ultrafast non-adiabatic solvent-assisted level crossing can be described.

Contact: Erik T. J. Nibbering

Prof. Dr. Majed Chergui, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Switzerland (majed.chergui@epfl.ch)

Dr. Erik T. J. Nibbering, Max Born Institute for Nonlinear Optics and Short Pulse Spectroscopy, Berlin, Germany (nibberin@mbi-berlin.de)

Prof. Dr. Victor S. Batista, Yale University, New Haven, CT, USA (victor.batista@yale.edu)

July 1st 2013: F. Messina et al., Angew. Chem. Int. Ed. 2013, 52, 6871 – 6875 (DOI: 10.1002/anie.201301931)

<http://dx.doi.org/10.1002/anie.201301931>

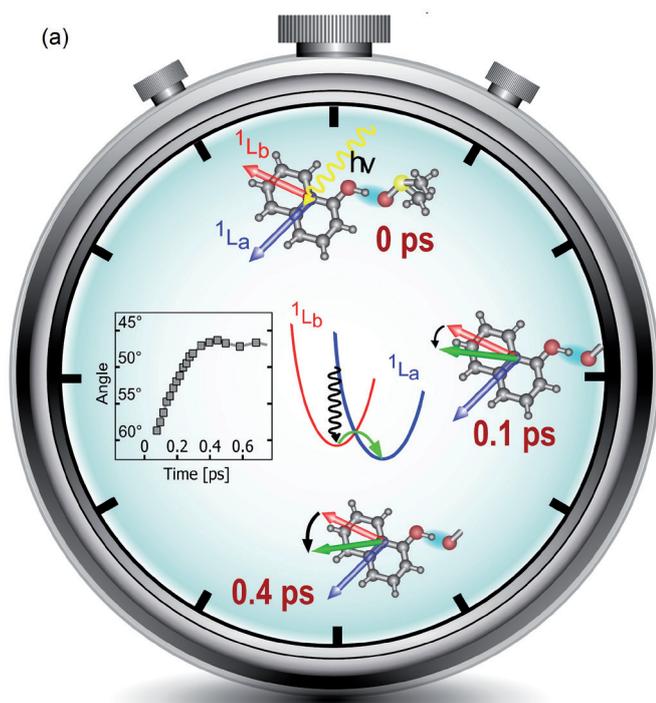


Figure:

(a) Polarization-resolved ultrafast fluorescence emission spectroscopy reveals ${}^1L_b \rightarrow {}^1L_a$ electronic level crossing dynamics of 1-naphthol in DMSO with a 60 fs time constant.

Abbildung:

(a) Die polarisationsaufgelöste ultraschnelle Fluoreszenzemissionsspektroskopie zeigt die ${}^1L_b \rightarrow {}^1L_a$ elektronische Zustandsänderungsdynamik von 1-Naphthol in DMSO mit einer 60 fs Zeitkonstante.

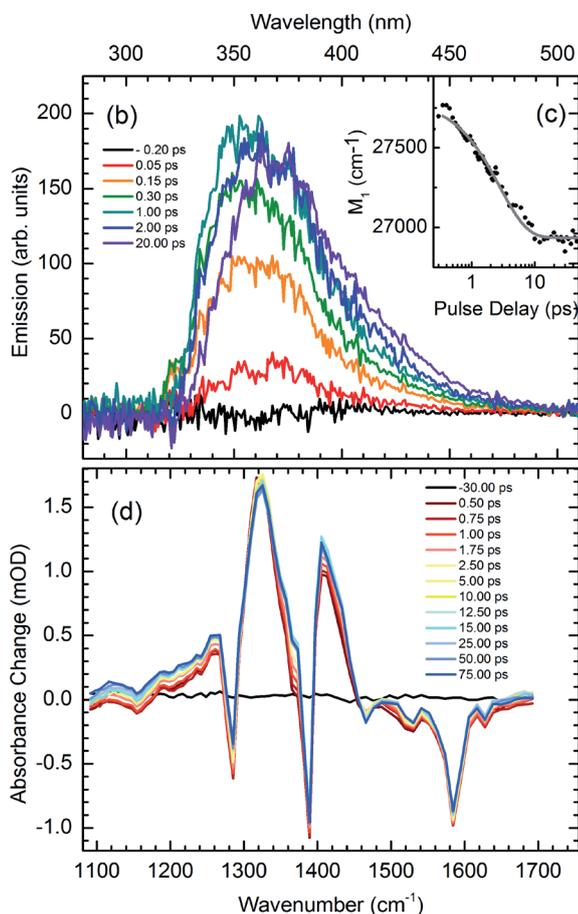


Figure:

(b) Subsequent emission dynamics is caused by solvent shell rearrangements as evidenced (c) by the time-dependent first moment $M_1(t)$ of the emission band, whereas (d) the transient IR fingerprint patterns only show minor changes due to vibrational cooling on these longer time scales.

Abbildung:

(b) Die nachfolgende Emissionsdynamik wird von Umlagerungen in der Solvathülle verursacht, die anhand des zeitabhängigen ersten Moment $M_1(t)$ der Emissionbande in (c) dokumentiert werden. Die transiente IR Schwingungsübergänge in (d) zeigen aufgrund der Dissipation von Schwingungsenergie nur geringfügige Veränderungen auf diesen längeren Zeitskalen.

Erläuterungen:

[1] Für eine Säure ROH, in wässriger Lösung im Gleichgewicht $\text{ROH} + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{H}_3\text{O}^+ + \text{RO}^-$, wird die Azidität angedeutet mit dem $\text{p}K_a$ -Wert: $\text{p}K_a = -^{10}\log K_a$ mit der Säuredissoziationskonstante K_a definiert als $K_a = [\text{H}_3\text{O}^+][\text{RO}^-]/[\text{ROH}]$. Sinkt dieser Wert um 1, dann entspricht dies bei einer in Wasser gelösten Säure einer 10mal höheren Konzentration von H_3O^+ -Ionen.

[2] Die elektronisch angeregten Zustände von 1-Naphthol und 2-Naphthol werden angedeutet durch die Symmetrie Annotationen 1L_a und 1L_b , die die bevorzugte relative Ausrichtung des Moleküls sowie die Polarisationsrichtungen der angeregten UV-Strahlung beschreiben

Glossary:

[1] For an acid ROH, under aqueous conditions having an equilibrium symmetric $\text{ROH} + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{H}_3\text{O}^+ + \text{RO}^-$ is the acidity is usually indicated with the $\text{p}K_a$ -value, defined as the $\text{p}K_a = -^{10}\log K_a$ with the acid dissociation constant in water K_a defined as $K_a = [\text{H}_3\text{O}^+][\text{RO}^-]/[\text{ROH}]$. Lowering the $\text{p}K_a$ -value by 1 unit results in a 10 times higher concentration of H_3O^+ ions when the acid is dissolved in water.

[2] The electronic excited states of 1-naphthol and 2-naphthol are indicated with the symmetry annotations 1L_a or 1L_b that indicate the preferential relative orientation of the molecule and the exciting UV radiation polarization directions.

MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

Allgemein

Licht und Laser im MBI

Am 8. Juni 2013 öffnete das MBI wieder seine Pforten zur Langen Nacht der Wissenschaften, und 890 Besucher zeigten ungebrochenes Interesse am vielfältigen Programm zu Licht und Lasern. Wie immer waren Laborführungen, Mitmachexperimente und Spiel- und Basteltische die Hauptattraktionen. Zum zweiten Mal dabei waren Jugend-forscht-Experimente aus dem Regionalwettbewerb 2013: Schüler der Heinrich-Hertz-Oberschule zeigten, wie man mit Licht telefonieren kann und wie ein CD-Player von innen aussieht.

Auch die nano-camper, zwölf Schülerinnen und Schüler und ein Filmteam des 3sat-Wissenschaftsmagazin „nano“, waren im MBI und haben sich das Kurzpuls-laserlabor erklären lassen

<http://www.3sat.de/mediathek/index.php?display=1&mode=play&obj=36761>

Die nächste Lange Nacht der Wissenschaften findet am **Samstag, dem 10. Mai 2014**, statt.

Kontakt: D. Stozno, Tel. 1508



MBI Interner Newsletter

4. Jahrgang - Ausgabe 11 - August 2013

TERMINE / SAVE THE DATE

2013

MBI - Sommerfest - Barbeque 2013



Your are welcome to our annual barbeque on Wednesday, 4th September 2013 at 2 p.m. on the lawn alongside of House C

Willkommen zu unserem diesjährigen Sommerfest am Mittwoch, 4. September 2013 um 14 Uhr auf der Wiese neben Haus C

Tage der Forschung in Berlin-Adlershof

Donnerstag und Freitag, 19./20. September 2013



Seitens des MBI sind dabei:

Maria Richter: *Theoretische Physik - wie man klassische und Quanten-mechanische Vorgänge der Natur am Computer simulieren kann*

Sandra Höhm & Florian Bach: *Experimentelle Laserphysik - Optische Experimente mit Licht und Spiegeln. Welche Farbe hat das Licht? Experiment mit Handspektrometer! Woran dreht der Laserphysiker? Versucht selbst in einem einfachen Experiment einen Laserstrahl zu justieren!w*

Beiratssitzung im MBI

Dienstag, 24. September 2013

2014

Wahl neuer Betriebsrat MBI

Anfang März - Ende Mai 2014

Lange Nacht der Wissenschaften 2014

Samstag, 10. Mai 2014