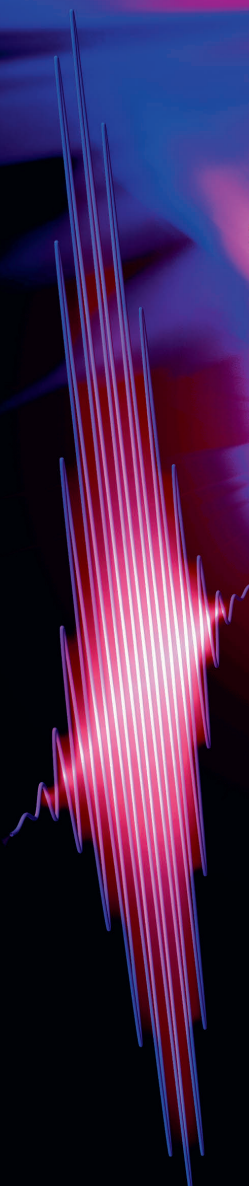
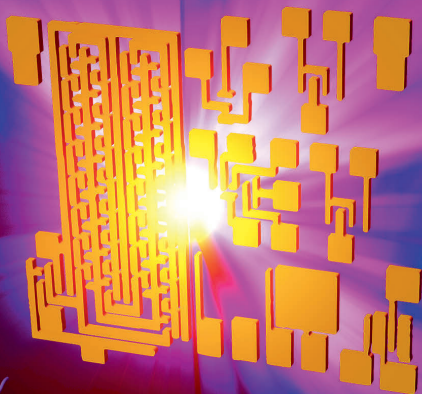


Kleurrijke diffractie maakt ultrasnelle microscopie mogelijk



Het blote oog heeft een tijdsresolutie van enkele tientallen milliseconden. Wetenschappers en ingenieurs werken al eeuwen aan manieren om deze grens te verleggen. Zij hebben hogesnelheidscamera's met extreem korte sluitertijden ontwikkeld, eerst mechanisch (tot de microseconde!) en later elektronisch (honderd nanoseconden). Maar ook elektronische circuits hebben een snelheidslimiet, de allersnelste transistoren doen er nog tientallen picoseconden over om te schakelen. Wat als we nog snellere processen willen zien, zoals chemische reacties of zelfs de bewegingen van elektronen?

Flits!

Dan biedt de pompsondemethode uitkomst. Hiervoor heb je twee (licht-)pulsen nodig: één om het proces in gang te zetten (de 'pomp') en één om er een momentopname van te maken (de 'sonde'). Door het verschil in aankomsttijd tussen de pomp en de sonde te variëren kun je dan de beelden verzamelen die samen een filmpje van het proces vormen. Dit werkt dus alleen bij processen die je met een puls in gang kunt zetten en die bovendien altijd hetzelfde verlopen – maar op deze schaal zijn dat er een hoop. Het mooie van de pompsondemethode is dat de tijdsresolutie nu niet meer wordt bepaald door de camera, maar door de duur van de sonde-puls. De camera ziet het sample namelijk alleen tijdens de duur van de flits, de rest van de sluitertijd is het donker. En lichtflitsen kunnen we heel kort maken.

Attoseconde-pulsen

Met *mode-locked*-lasers kunnen we pulsen van slechts enkele femtoseconden maken. Dit is kort genoeg om bewegingen van moleculen in chemische reacties te volgen! Maar elektronen zijn *nóg* sneller en kunnen zich door moleculen verplaatsen op een tijdschaal van honderden attoseconden [1]. Om deze elektronen te volgen hebben we dus *nóg* kortere pulsen nodig. Gelukkig kunnen we die femtoseconde-laserpulsen verder verkorten tot slechts tientallen attoseconden. Dit doen we door ze in een gas te focuseren waarbij het elektrische veld van de laser *zó* intens is dat het de atoompotentiala van de gasatomen vervormt (zie figuur 2). Elektronen kunnen dan uit de potentiaalput van de atomen tunnelen en worden vervolgens versneld in het elektrisch veld van de lichtpuls. Als even later het veld van richting verandert, schiet het elektron weer terug naar zijn moderatoom, waar het kan recombineren. De energie die het elektron

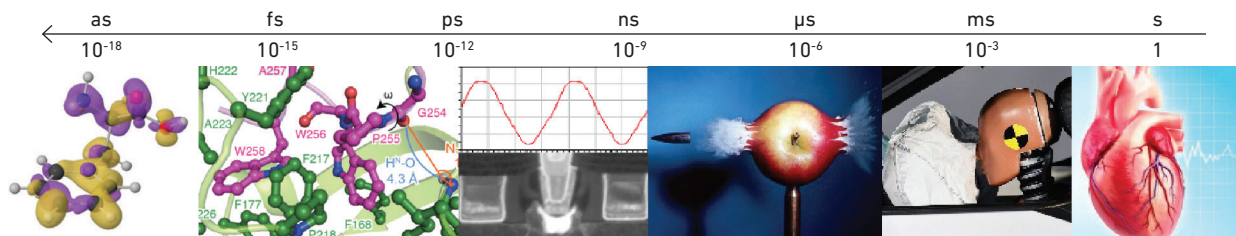
heeft gewonnen buiten het atoom (de som van de laserfotonen die het elektron heeft geabsorbeerd) wordt dan uitgezonden als een enkel foton in het extreem ultraviolet (euv). Dit gebeurt bij heel veel gasatomen tegelijk, en al deze euv-fotonen kunnen samen een extreem korte lichtpuls vormen, van enkele tientallen attoseconden (het huidige wereldrecord staat op 43 attoseconden [2]). Om te helpen beseffen hoe kort een attoseconde is, wordt de volgende vergelijking vaak gemaakt: een attoseconde verhoudt zich tot een seconde zoals een seconde zich verhoudt tot de leeftijd van het universum (op een factor twee na – of het echt helpt om je er iets bij voor te stellen mag je zelf bepalen). Elk foton in deze attoseconde-pulsen is ontstaan door het samenvoegen van de energie van tientallen tot honderden laserfotonen. Hierdoor zijn de golflengten van deze attoseconde-pulsen grofweg tussen één en honderd nanometer. Een voordeel van zulke korte golflengten is dat we een hoge resolutie kunnen behalen en dus een soort microscoop kunnen maken met een attoseconde-tijdsresolutie en een nanometer-ruimteresolutie! Een nadeel is echter dat het voor dit deel van het spectrum (extreem-uv en 'zachte' röntgen) heel moeilijk is om goede lenzen te maken. Is er voor onze 'attosecondemicroscoop' misschien een oplossing zonder lenzen?

Microscopie zonder lenzen

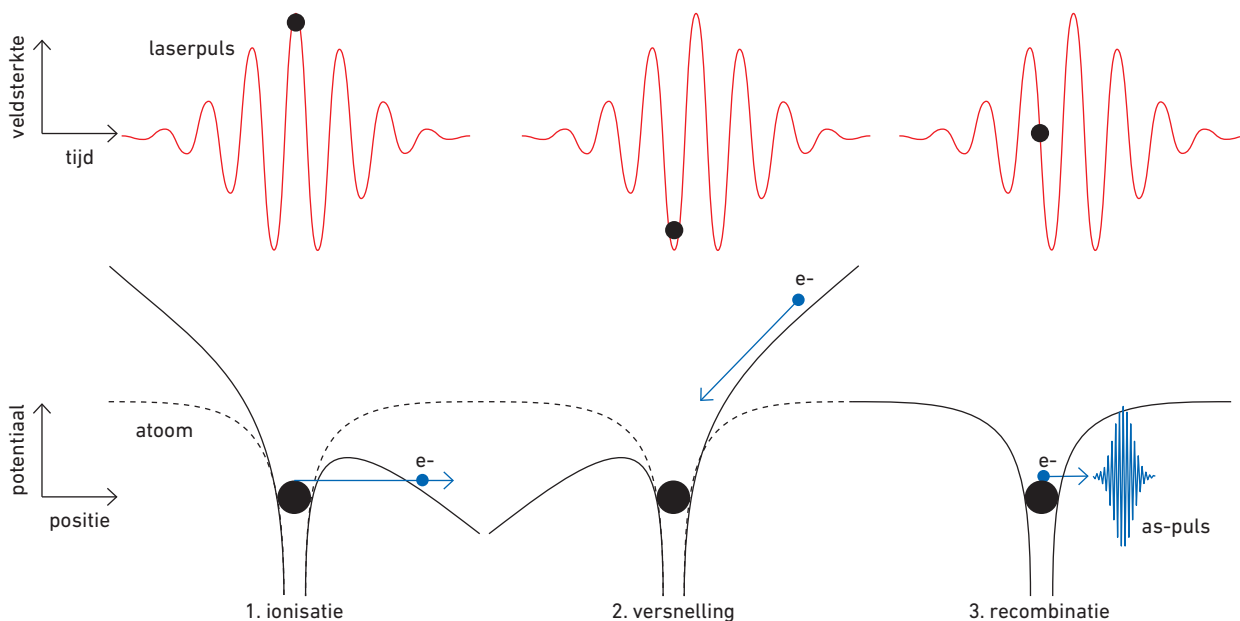
In een conventionele microscoop wordt het lichtpatroon dat van het sample komt opgevangen met een systeem van lenzen, om vervolgens een scherp, vergroot beeld te vormen van datzelfde lichtpatroon op een camera (of direct op je netvlies). Als we geen lenzen willen gebruiken, kunnen we dit lichtpatroon zich laten voortplanten tot het enkele centimeters groot is en het vervolgens opvangen op een camera in



Julius Huijts studeerde technische natuurkunde aan de TU Delft met een stage in Berkeley. Zijn promotieonderzoek voerde hij uit aan het CEA in Parijs (en het ICFO in Barcelona), waar hij zijn proefschrift *Broadband Coherent X-ray Diffractive Imaging and Developments towards a High Repetition Rate mid-IR Driven keV High Harmonic Source* op 20 juni 2019 met succes heeft verdedigd. Hij is nu postdoctoraal onderzoeker in het Laboratoire d'Optique Appliquée in Parijs.
j.v.huijts@gmail.com



Figuur 1. Tijdschalen: kloppend hart, ontplofende airbag, stroboscopische foto van een kogel, schakelende transistor, chemische reactie en bewegende elektronen in een molecuul.



Figuur 2. Omzetting van een femtoseconde-laserpuls in een attoseconde-puls, in drie stappen. Stap 1: het elektrisch veld van de laser is maximaal (boven), de vervorming van de atoompotentiaal ook (onder), evenals de kans dat een elektron de potentiaalput uit tunnelt. Het ontsnapte elektron wordt versneld in het elektrisch veld van de laserpuls, weg van het atoom. Stap 2: ongeveer een femtoseconde later heeft de laserpuls een halve golflengte afgelegd – het elektrisch veld rondom het geïoniseerde atoom staat nu in de tegenovergestelde richting. Het elektron wordt terug naar het atoom versneld. Stap 3: het elektron recombineert met het moederaatoom en valt terug naar de grondtoestand. De energie die het heeft opgedaan in het elektrisch veld – oftewel de laserfotonen die het heeft geabsorbeerd – wordt uitgezonden in de vorm van een enkel euv-foton (extreem ultraviolet). Dit proces gebeurt bij meerdere gasatomen tegelijk – samen kunnen deze euv-fotonen een attoseconde-puls vormen.

de vorm van een diffractiepatroon. Dit diffractiepatroon is gelijk aan de tweedimensionale Fouriertransformatie van het lichtpatroon dat van het sample afkomt. Dus kunnen we een scherp beeld van ons sample krijgen zonder lenzen, via een inverse Fouriertransformatie van het diffractiepatroon. Dit geldt alleen voor licht dat een hoge ruimtelijke coherentie heeft, wat het geval is voor laserlicht. Hiervoor hebben we niet alleen de amplitude van het diffractiepatroon nodig (de wortel van de intensiteit die de camera ziet) maar ook de fase van de lichtgolven van het diffractiepatroon (die kan de camera niet

zien). Deze fase kunnen we ‘raden’ met een *phase-retrieval*-algoritme, dat steeds heen-en-weer Fouriertransformeert tussen diffractiepatroon en sample. Het begint met een willekeurige (foute) fase, maar door te eisen dat het gereconstrueerde sample geïsoleerd is (de oplossing is nul buiten een bepaalde regio) en dat het berekende diffractiepatroon zo dicht mogelijk bij het gemeten diffractiepatroon moet liggen, beperken we de mogelijke oplossingen voor het algoritme en convergeert het naar een oplossing met de juiste fase en dus een gereconstrueerd sample. Goed, we hebben onze ultrakorte

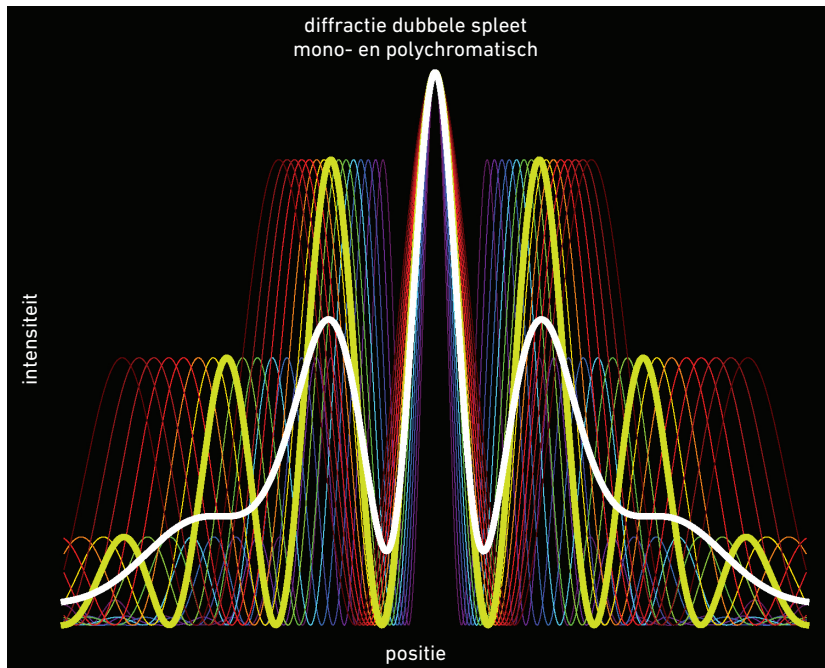
lichtpulsen en het probleem van de lenzen is opgelost. Zijn we er nu? Niet helemaal...

Een wazig probleem

Er is een heel fundamentele eigenschap van golven die roet in het eten gooit. Een golf met precies één golflengte, perfect monochromatisch, duurt per definitie oneindig lang. Omgekeerd bestaat een korte puls niet uit één enkele golflengte, maar een superpositie van een heel spectrum aan golflengten. Een puls van 50 attoseconden met een centrale golflengte van 7 nanometer heeft een spectrale bandbreedte nodig

van ten minste 20%, dus van 6,3 tot 7,7 nanometer. Dit is een gevolg van de Fourierrelatie tussen tijd en frequentie en is hetzelfde principe als Heisenbergs onzekerheidsrelatie in de quantummechanica. Dit is een probleem voor onze lensloze microscopie, waarin wordt aangenomen dat monochromatisch licht wordt gebruikt. Door de superpositie van alle verschillende golflengten wordt het diffractiepatroon wazig (zie figuur 3), waardoor het het algoritme niet meer lukt om de fase en daarmee het sample te reconstrueren. (Met lenzen voor röntgen/euv zouden we dit probleem overigens ook hebben, aangezien zij ook alleen bij een specifieke golflengte werken.)

Je kunt dit probleem oplossen door de bijdragen van alle golflengten in het diffractiepatroon als het ware uit elkaar te trekken, via een methode die Fouriertransformatiespectroscopie heet [3]. Hierbij wordt de sondepuls in tweeën gesplitst en hetzelfde diffractiepatroon vele malen opgenomen terwijl het verschil in aankomsttijd tussen de gesplitste pulsen wordt gevarieerd. Door interferentie tussen de twee identieke sondepulsen kan voor ieder punt in het diffractiepatroon het spectrum worden bepaald. Je hebt dan de beschikking over het diffractiepatroon bij elke golflengte. Maar de goede uitvoering van deze techniek is heel lastig (vooral de controle van de aankomsttijd van de twee sondepulsen) en voor een pompsondefilmpje van onze supersnelle microscoop zou je dan voor ieder beeld van het filmpje die scan in aankomsttijd van de gesplitste pulsen moeten doen. Liever zouden wij met één enkele flits al een beeld hebben. Daar heb ik iets op bedacht. Het polychromatische diffractiepatroon is gelijk aan de incoherente som van de monochromatische diffractiepatronen van alle golflengten in het spectrum (figuur 4). Als we kunnen aannemen dat ons sample identiek is voor al deze golflengten (de brekingsindex is vrijwel constant), dan hebben deze monochromatische diffractiepatronen dezelfde vorm, op een vergroting of verkleining na. Deze vergroting/verkleining is gegeven door de golflengte en eenvoudig te berekenen. Dus: het



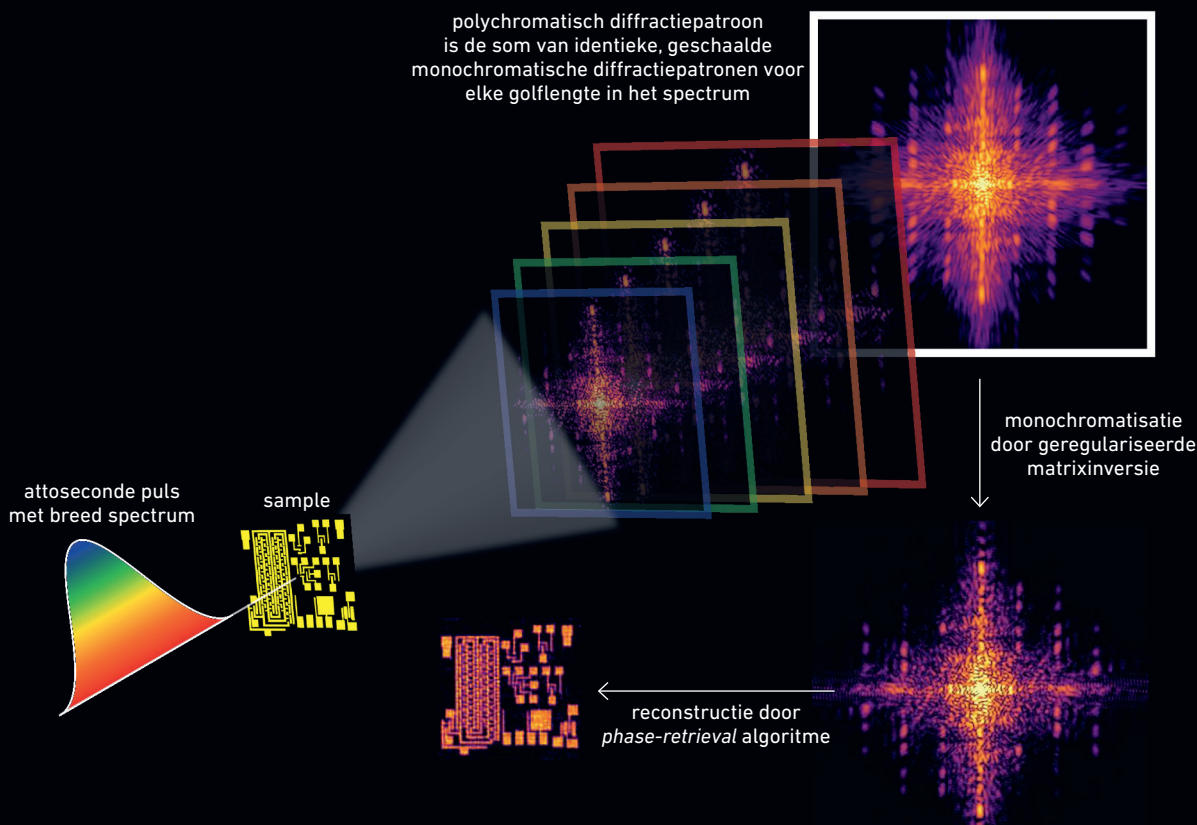
Figuur 3. Een van de bekendste diffractiepatronen is dat van het dubblespleetexperiment van Thomas Young. In felgroen zien we het diffractiepatroon dat ontstaat als de dubbele spleet wordt beschienen met licht van één bepaalde golflengte, waarbij de interferentie zichtbaar is met hoog contrast. Als de dubbele spleet wordt beschienen met een heel spectrum aan golflengten, dan genereert iedere golflengte een patroon van dezelfde vorm, maar iets groter of kleiner. Als we al deze patronen bij elkaar optellen (de camera is kleurenblind) is het resultaat een patroon waarbij de interferentie wazig is geworden (de witte lijn).

polychromatische patroon is de som van identieke, geschaalde monochromatische patronen, waarbij de schaling en de relatieve bijdrage (intensiteit) van deze monochromatische patronen is bepaald door het spectrum. Dit probleem laat zich uitstekend vangen in een matrixvectorbeschrijving: $\mathbf{p} = \mathbf{C} \mathbf{m}$, waar \mathbf{p} het polychromatische patroon is, \mathbf{C} de matrix die de schaling en het spectrum beschrijft en \mathbf{m} het monochromatische patroon. Als we dit matrixvectorprobleem kunnen inverteren, kunnen we dus ons wazige diffractiepatroon weer scherp maken!

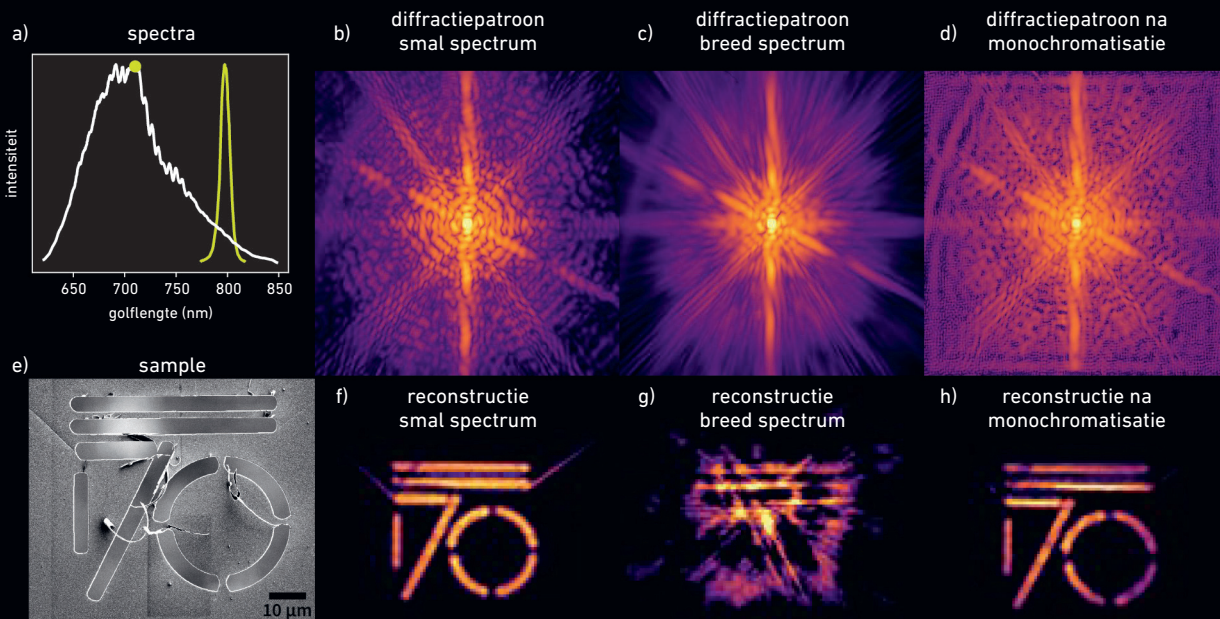
Had ik nu maar beter opgelet bij lineaire algebra...

De determinant van \mathbf{C} is ongelijk aan nul, dus de matrix is in principe inverteerbaar. Toch is er nog een probleem: in een experiment geeft $\mathbf{m}' = \mathbf{C}^{-1} \mathbf{p}$ iets wat helemaal niet lijkt op een diffractiepatroon, maar alleen rommel van min oneindig tot plus oneindig! Dat komt doordat we in het experiment

niet de exacte waarden hebben voor \mathbf{C} en \mathbf{p} , maar slechts een benadering, gelimiteerd door ruis. En de inversie van onze matrix blijkt daar héél gevoelig voor. Dit wordt uitgedrukt met het 'conditiegetal': hoe hoger het conditiegetal, hoe groter de invloed van ruis in de inversie. Onze matrix heeft een enorm hoog conditiegetal, wat wil zeggen dat deze in de praktijk eigenlijk bijna niet inverteerbaar is. Gelukkig worden al tientallen jaren zogeheten regularisatiemethoden ontwikkeld, die met slimme lineaire algebra proberen om alleen de 'interessante' informatie te inverteren en niet de ruis. De methode die het best bleek te werken voor mijn probleem bouwt \mathbf{m}' op met behulp van Krylov-basisvectoren. Deze basisvectoren zijn gebaseerd op het gemeten diffractiepatroon \mathbf{p} en de matrix \mathbf{C} . Door basisvectoren toe te voegen wordt \mathbf{m} steeds beter benaderd, totdat na enkele tientallen basisvectoren de geïnverteerde ruis begint te domineren (dit heet semi-convergentie). Dus door



Figuur 4. Het principe van de detectiemethode. Na monochromatisatie van het polychromatische diffractiepatroon kan een *phase-retrieval*-algoritme het sample reconstrueren.



Figuur 5. Resultaat van het experiment met zichtbaar licht. a) De spectra gebruikt in dit experiment: een smal (groen, bandbreedte 1%) en een breed spectrum (wit, bandbreedte 11%). b) Het diffractiepatroon met het smalle spectrum. c) Het diffractiepatroon met het brede spectrum. d) Het diffractiepatroon van (c), na geregulariseerde inversie. De kleurschaal in (b)-(d) is logaritmisch. e) Het sample voor dit experiment. f) De reconstructie van het patroon in (b). g) Een (mislukte) reconstructie van het patroon in (c). h) Reconstructie van het patroon in (d).

Julius Huijts wint NTvN-Prijsvraag

Als het proefschrift af is en al het werk degelijk is vastgelegd voor de naaste vakgenoten, blijft er een uitdaging over. Kun je het ook uitleggen aan een breed publiek? Zelfs als het heel geïnteresseerd is in natuurkunde en kritisch meeleest?

Die uitdaging is de jaarlijkse NTvN-prijsvraag. Maar liefst zes verse doctoren, uit heel verschillende vakgebieden, namen deze handschoen op. Hoewel elke bijdrage zijn kwaliteiten had, koos de jury unaniem drie winnaars.

De belangrijkste criteria voor de jury waren:

- Begrijpen we wat het promotieonderzoek inhield en wat het toevoegde in het vakgebied?
- Waren we gegrepen? Kreeg de auteur ons op het puntje van de stoel?
- Werden we geholpen door het taal-

gebruik en de afbeeldingen? Het laatste criterium is misschien wel het lastigst. Het is een hele kunst om vlot te schrijven en toch alle essentiële informatie mee te geven aan de lezer. Het kost moeite om je vakjargon los te laten en hetzelfde nog eens te zeggen in toegankelijk Nederlands. Afbeeldingen kunnen je lezer begeleiden bij de tekst, maar ook voor nieuwe raadsels plaatsen.

De derde prijs gaat naar Robbie Elbertse voor zijn artikel over spingolven in atomaire ketens. Hij neemt ons mee naar het kleinste fysische laboratorium ooit, waar individuele atomen worden opgelijnd en ingesteld voor een goed doordachte ‘practicumproef’ aan spingolven.

De tweede prijs is voor Melissa Rinaldin. Ze geeft meteen aan wat ze wil onderzoeken – de invloed van de

geometrie op fasescheiding – en maakt duidelijk waarom dat van belang is in de natuur. De aanzienlijke inleiding die dit complexe onderwerp nu eenmaal nodig heeft wordt didactisch verzorgd en leidt niet af. Dan komt ze terug op het onderwerp. En we zijn verrast door de experimentele aanpak.

De hoofdprijs gaat dit jaar naar Julius Huijts, voor zijn artikel over tijdsopgeloste microscopie op de schaal van attoseconden. Het verhaal is goed doordacht. De illustraties zijn behulpzaam. De tekst is gemakkelijk leesbaar, soms zelfs losjes geschreven. Maar schijn bedriegt hier. De auteur weet voldoende details in de tekst te plaatsen voor de lezer die echt wil weten hoe het zit.

De jury,
Claud Biemans, Aernout van Enter, Vincent Icke en Robert Jan van Wijk

een optimaal aantal basisvectoren te gebruiken, lukt het tóch om een goede benadering voor m te berekenen en dus een scherp diffractiepatroon te krijgen. Dit ‘gemonochromatiseerde’ patroon kunnen we vervolgens aan het phase-retrieval-algoritme geven, dat dan een beeld van het sample reconstrueert. Tijd om het te testen!

Het werkt!

Laten we de eerste test simpel houden. We maken een binair sample, met een transmissie van 0 of 1, door een opening te snijden in een opaak membraan (figuur 5e). Dit sample beschijnen we met laserlicht, waarvan we het spectrum verbreden (via zogeheten supercontinuümgeneratie [4]) tot 11%. Als controle selecteren we eerst een nauwe band uit dit spectrum, waarmee we het sample beschijnen. Dit geeft een mooi monochromatisch diffractiepatroon (figuur 5b). Met een phase-retrieval-

algoritme lukt het inderdaad om het sample te reconstrueren (figuur 5f). Vervolgens beschijnen we het sample met het brede spectrum. Het diffractiepatroon (figuur 5c) heeft dezelfde vorm, maar is ‘uitgesmeerd’ in de radiale richting, door de bijdragen van alle verschillende golflengten (vergelijk dit met de witte lijn in figuur 2). Het lukt het phase-retrieval-algoritme niet om op basis van dit diffractiepatroon het sample te reconstrueren (figuur 5g). Met het gemeten brede spectrum maken we nu matrix C en gebruiken die om het uitgesmeerde patroon te monochromatiseren. In het resultaat (figuur 5d) zien we duidelijk dezelfde interferenties als in figuur 5b, evenals opkomende geïnverteerde ruis (vooral aan de randen, waar de signaalruis-verhouding slechter is). Dit patroon is goed genoeg voor het phase-retrieval-algoritme om de fase te vinden en het sample correct te reconstrueren!

Kortom, het is gelukt om een methode te ontwikkelen waardoor lensloze microscopie kan worden gecombineerd met brede spectra, wat van belang is voor de ontwikkeling van microscopie met attoseconde-tijdsresolutie. Een eerste experiment met een eenvoudig testsample en zichtbaar licht laat zien dat het principe werkt. Een tweede experiment met röntgenstraling is intussen ook al gelukt [5]. De volgende stap is natuurlijk met echte attoseconde-pulsen en een realistisch sample. En dan zullen zelfs de alersnelste elektronen ons niet meer te vlug af zijn!

REFERENTIES

- 1 M. Nisoli et al., *Chemical Reviews* **117**, 16 (2017).
- 2 T. Gaumnitz et al., *Optics Express* **25**, 22 (2017).
- 3 M. Jansen, *Nederlands Tijdschrift voor Natuurkunde* **86-4** (2020).
- 4 J. M. Dudley et al., *Review of Modern Physics* **78**, 1135 (2006).
- 5 J. Huijts et al., *Nature Photonics* **14**, 10 (2020).