

# Inaugural-Dissertation

zur

Erlangung der Doktorwürde

der

Naturwissenschaftlich-Mathematischen

Gesamtfakultät

der Ruprecht-Karls-Universität

Heidelberg

vorgelegt von

Dipl.-Phys. Karl Zrost

aus Dresden

Tag der mündlichen Prüfung: 9. Februar 2005



**Wechselwirkung von Atomen und kleinen  
Molekülen mit intensiven, ultra-kurzen  
Laserpulsen**

**Gutachter: Prof. Dr. Joachim Ullrich  
Prof. Dr. Dirk Schwalm**



## **Zusammenfassung:**

Im Rahmen dieser Arbeit wurden vielfältige Untersuchungen zur Wechselwirkung von Atomen und Molekülen mit intensiven, ultra-kurzen Laserpulsen durchgeführt. Ziel war es, die korrelierte Dynamik von Elektronen auf einer Zeitskala von wenigen fs bis hin zu as in kinematisch vollständigen Experimenten zu untersuchen. Dazu wurde ein Reaktionsmikroskop mit einem Titansaphir-Laserverstärker kombiniert und die emittierten 25 fs-Pulse mittels eines im Rahmen dieser Arbeit entworfenen Pulskompressors auf 5 fs verkürzt. Pulse von so kurzer Dauer, wie sie lediglich in etwa 5 Laboren weltweit zur Verfügung stehen, sind schwer zu charakterisieren, weshalb neue Methoden entwickelt wurden die Pulse direkt am Ort des Targets, zu vermessen. In den aufgenommenen hochaufgelösten und volldifferentiellen Wirkungsquerschnitten der Einfachionisation verschiedener Edelgase wurden bei den verwendeten hohen Intensitäten unerwartete Strukturen entdeckt, die bei den kurzen Pulsen verwischen. Systematische Untersuchungen zur Doppelionisation führten zudem zur Erklärung der zuvor schon beobachteten Unterschiede in den differentiellen Querschnitten für verschiedene Edelgase. Die beobachtete Unterdrückung der Doppelionisation bei 5 fs Pulsen ist allerdings noch unverstanden. Weiterhin aufgenommene einfachdifferentielle Querschnitte für die Mehrfachionisation von Neon und Argon geben einen tiefen Einblick in die Vielteilchendynamik in intensiven Laserfeldern, wobei auch hier eine starke Abhängigkeit von der atomaren Struktur erstmals beobachtet wurde.

## **Abstract:**

In the course of this work the interaction of atoms and molecules with intense, ultra short laser pulses was investigated. The aim was to study the correlated dynamics of electrons on a timescale of few fs and even down to the as scale in cinematically complete experiments. For this the 25 fs pulses emitted by a titan-sapphire laser were shortened to 5 fs and sent into a reaction microscope. Pulses of this duration are accessible in only about 5 laboratories worldwide and hard to characterize. Consequently, new methods to measure the properties of the pulses directly at the target were developed. In the measured high-resolved, fully differential single ionisation cross sections of several rare gases unexpected structures were discovered at high intensities that wither with shorter pulses. Systematic investigations of double ionisation lead to the explanations of differences in the differential cross sections found earlier for several rare gases. However, the suppression of the double ionisation at 5 fs is not yet understood. The measured singly differential cross sections for multiple ionisation of neon and argon give a deeper insight in the many-particle dynamics in intense laser fields, and also here a strong dependence of the atomic structure was seen for the first time.



# Inhaltsverzeichnis

<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>1 Wechselwirkung von Atomen und Molekülen mit einem intensiven Laserfeld</b>	<b>5</b>
1.1 Geladene Teilchen im Laserfokus . . . . .	6
1.2 Mechanismen der Einfachionisation . . . . .	7
1.2.1 Multiphotonionisation . . . . .	7
1.2.2 Tunnelionisation . . . . .	13
1.2.3 Rückstreuung . . . . .	16
1.3 Mechanismen der Mehrfachionisation . . . . .	17
1.3.1 Mehrfachionisation . . . . .	25
1.4 Wasserstoff und Deuterium im intensiven Laserfeld . . . . .	28
1.4.1 Fragmentationsprozesse in H <sub>2</sub> (D <sub>2</sub> ) . . . . .	30
<b>2 Erzeugung intensiver kurzer Pulse</b>	<b>35</b>
2.1 Die Beschreibung kurzer Laserpulse . . . . .	35
2.2 Das Lasersystem . . . . .	39
2.3 Die Erzeugung ultra-kurzer intensiver Laserpulse . . . . .	41
2.3.1 Selbstphasenmodulation . . . . .	41
2.3.2 Faserleitung . . . . .	43
2.3.3 Spektren . . . . .	48
2.3.4 Dispersion . . . . .	50
2.3.5 Aufbau . . . . .	54
2.4 Autokorrelationen . . . . .	55
2.4.1 Die Autokorrelation n-ter Ordnung . . . . .	56
2.5 Bestimmung der Intensität . . . . .	61
2.6 Die qualitative Pulsanalyse mittels der Ionisation von Wasserstoff . .	62
<b>3 Experimentelle Ergebnisse</b>	<b>67</b>
3.1 Das Reaktionsmikroskop . . . . .	67

3.2	Resonanzstrukturen bei der Einfachionisation im Tunnelionisationsbereich . . . . .	71
3.3	Atomstrukturabhängigkeit der nichtsequentiellen Doppelionisation . .	82
3.4	Korrelierte Elektronendynamik bei Mehrfachionisation verschiedener Edelgase . . . . .	98
3.5	Mehrfachionisation von Edelgasen bei sehr kurzen Pulsen . . . . .	110
	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>115</b>
	<b>Anhang A</b>	<b>119</b>
A.1	Atomare Einheiten . . . . .	119
A.2	Sellmeiergleichungen . . . . .	120
	<b>Anhang B, Mathematika Skripte</b>	<b>123</b>
B.1	Astigmatismusausgleich . . . . .	123
B.2	Pulsanalyse . . . . .	126
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>129</b>



# Einleitung

Das Verhalten von Atomen und Molekülen in starken zeitabhängigen elektrischen Feldern zählt zu den fundamentalen Fragestellungen in der modernen Atom- und Molekülphysik. Im wesentlichen stehen zwei Methoden zur Verfügung, um solche Felder zu erzeugen: Stöße mit schnellen geladenen Teilchen (Elektronen oder Ionen) mit Atomen oder Molekülen und intensive Laserfelder.

In Stößen mit geladenen Teilchen können extrem kurze (sub-Attosekunden) und starke elektromagnetische Pulse generiert werden, wenn das geladene Projektil in geringem Abstand an der Probe vorbeifliegt, wobei die dabei auftretenden Feldstärken leicht die inneratomaren Felder übertreffen. Ein genaues Verständnis solcher Reaktionen ist nicht nur in der physikalischen Grundlagenforschung von Interesse, sondern bildet auch die Voraussetzung für eine Reihe von technischen Anwendungen in unserer modernen Gesellschaft. Diese reichen vom Strahlenschutz über Tumortherapie mit schweren Ionen oder Protonen bis hin zur Erzeugung von Plasmen jeglicher Art, zur Dotierung von Materialien oder zur Erzeugung von Nanostrukturen. Nicht zuletzt aus diesen Gründen werden atomare Stöße seit vielen Jahren intensiv untersucht. Mit neuen experimentellen Methoden, wie der Einführung des Reaktionsmikroskops [UMD<sup>+</sup>03] wurden immer detaillierte Einsichten in die dabei auftretenden Prozesse gewonnen und durch theoretische Untersuchungen gestützt.

Durch die Entwicklung von Hochleistungslasern auf der anderen Seite steht seit kurzem eine neue Quelle zur Erzeugung sehr starker Felder zur Verfügung. Waren die Feldstärken im Vergleich mit den inneratomaren Feldern am Anfang noch sehr klein, so wuchsen sie mit der Einführung von gütegeschalteten Lasern rasant an. Damit war es erstmals möglich Lichtintensitäten zu erzeugen, die groß genug sind Atomen zu ionisieren, obwohl die Energie eines einzelnen Photons bei weitem nicht ausreicht, um das Ionisationspotential zu überwinden: Das Atom absorbiert mehrere Photonen gleichzeitig (Multiphotonenionisation), oder es wird im elektrischen Feld der Lichtwelle feldionisiert [SM85], [WSD<sup>+</sup>94]. Differentielle Messungen, wie sie bereits bei der Untersuchung von atomaren Stößen gang und gäbe waren, konnten jedoch bei Repetitionsraten dieser Laser von 10 Hz nahezu nicht durchgeführt werden. Dies wurde erst mit dem Einsatz von kHz-Verstärkersystemen auf Basis des

Titansaphirlasers möglich, welche Lichtpulse mit einer Länge von 10-100 fs (800 nm Zentralwellenlänge) emittieren und elektrische Feldstärken erreichen, die in der selben Größenordnung liegen oder gar höher sind als diejenigen, die ein Elektron im Wasserstoffatom auf der ersten Bohr'schen Bahn erfährt. In Kombination mit Reaktionsmikroskopen für den effizienten Nachweis aller Reaktionsprodukte war es nach der Jahrtausendwende erstmals möglich differentielle Messungen zur Doppelionisation in intensiven Laserfeldern durchzuführen [WWS<sup>+</sup>00a], [MFS<sup>+</sup>00]. Damit konnte eine über 10 Jahre andauernde Diskussion zur Frage, welcher der vielen theoretisch vorhergesagten korrelierten Prozesse zu den zuvor beobachteten unerwartet hohen Ionenausbeuten dominant beiträgt, beendet werden.

Einen sehr interessanten Übergangsbereich zwischen Stößen von Atomen mit geladenen Teilchen einerseits, welche beim Passieren einen elektrischen Halbzykluspuls am Ort des Targets generieren, und Laserfeldern mit vielen optischen Zyklen innerhalb des Pulses andererseits, bilden sehr kurze Laserpulse (3-7 fs), welche nur noch aus ein bis drei optischen Zyklen bestehen<sup>1</sup>.

Wesentliches Ziel der vorliegenden Arbeit war es deshalb solch extrem kurze und gleichzeitig intensive Laserpulse, wie sie nur in etwa fünf Laboren weltweit zur Verfügung stehen, zu erzeugen, und ultra-schnelle elektronische Prozesse bei der Ionisation und der Fragmentation mittels kinematisch vollständiger Experimente zu untersuchen. Dazu wurde ein Pulskompressor entwickelt, der in der Lage ist, die Pulse auf 5 fs zu verkürzen. Danach wurden erstmals systematische Messungen zur Einfach- und Mehrfachionisation von Atomen und Molekülen über einen Pulslängenbereich von 25 fs bis hin zu 7 fs durchgeführt. Wesentliche Ergebnisse waren die Entdeckung von überraschenden und stark ausgeprägten Quanten- und Interferenzstrukturen bei der Einfachionisation bei extrem starken Feldern, wo eigentlich ein glatter Verlauf der Elektronenspektren im Impulsraum erwartet wurde [RZS<sup>+</sup>04]. Zu kürzeren Pulslängen hin sind die Strukturen, die nun von einigen Theoriegruppen intensiv erforscht werden, weniger ausgeprägt. Erste systematische Messungen zur Doppel- und Mehrfachionisation für verschiedene Edelgase ergaben dramatische, ebenfalls nicht erwartete Unterschiede in den Ionenimpulsspektren und damit eindeutige Hinweise darauf, dass sehr unterschiedliche korrelierte Zwei- bzw. Vielteilchenprozesse bei den verschiedenen Targets dominant auftreten [JFZ<sup>+</sup>04]. Bis zur Vierfachionisation deuten zum Beispiel die Spektren für Neonatome an, dass hochkorrelierte, sub-femtosekunden Elektronenstoßprozesse, bei denen offensichtlich bis zu vier Elektronen beteiligt sind, die Hauptbeiträge zur Vierfachionisation unabhängig von der Pulsdauer liefern. Bei Argon hingegen, deuten die Spektren auf den Beitrag vieler unterschiedlicher Reaktionswege hin, von denen manche bei sehr kurzen Pulsen unterdrückt werden, was zu dem zunächst völlig überraschenden Phänomen von stärker

---

<sup>1</sup>Bei 800 nm ist ein optischer Zyklus 2,65 fs lang.

ausgeprägten Strukturen bei kürzeren Pulsen in den Impulsspektren führt [RZF<sup>+</sup>04].

Der Inhalt der vorliegenden Arbeit gliedert sich wie folgt:

Das erste Kapitel bildet eine Einführung in die Physik der Wechselwirkung von Atomen und kleinen Molekülen mit intensiven Laserfeldern, und gibt einen kurzen Überblick über den momentanen Wissensstand in diesem Gebiet. Es werden die Mechanismen vorgestellt, welche bei der Ionisation von Atomen und Wasserstoffmolekülen in solchen Feldern auftreten.

In Kapitel zwei wird, nach dem das existierende Lasersystem vorgestellt wurde, die Methode zur Erzeugung kürzester intensiver Pulse skizziert und die experimentellen Anforderungen zur Realisierung werden diskutiert. Des weiteren wird die Charakterisierung der so erzeugten, bis zu 5 fs kurzen Pulse, einerseits mit Standardtechniken (Autokorrelation) aber auch mit neuen Methoden, wie zum Beispiel der Autokorrelation n-ter Ordnung im Reaktionsmikroskop selbst, vorgestellt. Weitergehende qualitative Aussagen über die Pulsform lassen sich insbesondere auch aus den gemessenen Protonenimpulsspektren herleiten, die bei der Ionisation von Wasserstoffmolekülen in diesen intensiven Pulsen entstehen [RFZ<sup>+</sup>04].

Im dritten Kapitel werden die mit Hilfe eines hochauflösenden Reaktionsmikroskops [JRF<sup>+</sup>04] gewonnen differentiellen Daten zur Ionisation von verschiedenen Edelgasen mit 7 fs und 25 fs-Laserpulsen vorgestellt, wobei als Erstes auf die experimentelle Methode zur Aufnahme dieser mehrfachdifferentiellen Wirkungsquerschnitte eingegangen wird. Im zweite Teil werden die Ergebnisse für die Einfachionisation von Helium, Argon und Neon in intensiven Laserfeldern diskutiert. Die beobachteten ein- und zweidimensionalen Energie- und Impulsspektren der Elektronen weisen resonante Strukturen auf, die bei den verwendeten hohen Intensitäten (Tunnelregime) noch nie zuvor beobachtet werden konnten [RZS<sup>+</sup>04]. Bei niedrigen Energien ist auch eine eindeutige Abhängigkeit von der atomaren Struktur zu erkennen. Der darauf folgende Teil enthält eine systematische Untersuchung der Doppelionisation von Helium, Neon und Argon. Es wurde ein einfaches Modell entwickelt anhand dessen die Unterschiede in den Ionenimpulsspektren entlang der Laserpolarisation für die verschiedenen Edelgase erklärt werden konnten [JFZ<sup>+</sup>04]. Die letzten beiden Teile enthalten die Ergebnisse zur Dreifach- und Mehrfachionisation von verschiedenen Edelgasen bei 25 fs und 7 fs langen Pulsen. Dabei werden die verschiedenen Ionisationspfade der Dreifachionisation diskutiert, ihr Beitrag zur Gesamtrate abgeschätzt und die dabei gewonnenen Erkenntnisse auf die Mehrfachionisation in intensiven Laserfeldern übertragen. Auf Grundlage dieser Ergebnisse werden dann die Unterschiede in den Verhältnissen von Mehrfach- zu Einfachionisation und in den Ionenimpulsspektren entlang der Laserpolarisationsrichtung diskutiert, die bei 7 fs Pulsen gegenüber den 25 fs Pulsen auftreten.



# Kapitel 1

## Wechselwirkung von Atomen und Molekülen mit einem intensiven Laserfeld

Dieses Kapitel gibt einen kurzen Überblick über die Physik der Wechselwirkung von Atomen und kleinen Molekülen mit intensiven Laserfeldern. Nach einer kleinen Einführung, die beschreibt, wie sich ein geladenes Teilchen klassisch im Laserfeld bewegt, wird im zweiten Teil die Einfachionisation diskutiert. Dabei wird im besonderen auf die Intensitätsabhängigkeit der Mechanismen, die zur Ionisation führen, und die Auswirkung der Pulsdauer eingegangen.

Im dritten Teil werden verschiedene Mechanismen vorgestellt, die vorgeschlagen wurden, die um Größenordnung höher als erwartet liegende Mehrfachionisationsrate bei kleiner Intensität zu erklären. Anhand der Diskussion einer der ersten mehrfachdifferentiellen Messungen zur Doppelionisation wird deutlich gemacht, dass als korrelierter Prozess, der in der Lage ist Ionenausbeute um Größenordnung gegenüber der unkorrelierten, sequentiellen Mehrfachionisation zu erhöhen, nur der Rückstreuungmechanismus einen signifikanten Beitrag liefern kann, da die anderen Mechanismen zu anderen Signaturen als den Beobachteten in den differentiellen Wirkungsquerschnitten führen.

Der letzte Teil beschäftigt sich mit der Fragmentation von Wasserstoff- und Deuteriummolekülen in intensiven Laserfeldern als einfachstes Beispiel für die Wechselwirkung von Molekülen allgemein mit Laserfeldern. Vom besonderen Interesse ist dabei die Dynamik der Kernwellenfunktion, da die Schwingungsdauern solcher Moleküle im Bereich der heute herstellbaren Pulslängen von ungefähr 10 fs liegen.

## 1.1 Geladene Teilchen im Laserfokus

Bevor die Ionisationsmechanismen studiert werden sollen, stellt sich zunächst die allgemeine Frage, wie sich Elektronen bzw. geladene Teilchen im intensiven Laserfeld verhalten. Wenn ein Atom ionisiert wird und das Elektron sich weit genug vom verbleibenden Ion weg bewegt hat, so dass das Coulombfeld vernachlässigt werden kann, dominiert das Laserfeld die weitere Dynamik des Prozesses.

Für die folgenden Betrachtungen wird angenommen, dass sich das Elektron oder Ion im Laserfeld nicht relativistisch verhält und dass somit das magnetische Feld keine Rolle spielt ( $I_{\text{Laser}} \leq 10^{17} \text{W/cm}^2$ ). Die Bewegungsgleichung für ein Teilchen mit Ladung  $q$  und Masse  $m$  im Feld mit Polarisation in  $z$ -Richtung und der Frequenz  $\omega$  ist gegeben durch:

$$m\ddot{z} = q \cdot A(t) \cdot \sin \omega t. \quad (1.1)$$

Durch Integration und unter der Annahme, dass sich die Einhüllende des Feldes  $A(t) = A(0)$  mit der Zeit nicht ändert, ergibt sich für ein Elektron ( $q = 1$ ,  $m = 1$  in atomaren Einheiten s. Anhang A.1)

$$\dot{z}(t) = v_0 - 2\sqrt{U_p}(\cos \omega t - \cos \omega t_0) \quad (1.2)$$

$$z(t) = z_0 - \frac{2\sqrt{U_p}}{\omega}(\sin \omega t - \sin \omega t_0) + (v_0 + 2\sqrt{U_p} \cos \omega t_0)(t - t_0), \quad (1.3)$$

mit  $A/\omega = 2 \cdot \sqrt{U_p}$ . Die Bewegung des Elektrons setzt sich aus einer Oszillation und einem Drift abhängig von der Zeit  $t_0$ , bei der das Elektron freigesetzt wurde, zusammen. Die über die Laseroszillationen gemittelte kinetische Energie ist

$$E = E_0 + 2U_p\left(\frac{1}{2} + \cos^2 \omega t_0\right) - 2\sqrt{U_p}\sqrt{2 \cdot E_0} \cos \omega t_0. \quad (1.4)$$

Sie besteht aus der Anfangenergie  $E_0$ , der sogenannten Zitterenergie oder auch ponderomotiven Energie  $U_p$ , der Driftenergie  $2U_p \cos \omega t_0$  und dem Kreuzterm  $2\sqrt{U_p}\sqrt{2 \cdot E_0} \cos \omega t_0$ . Für den Fall, dass das Elektron am Anfang ruht ( $E_0 = 0$ ), beträgt die maximale Energie  $E = 3U_p$  für  $t_0 = 0 + 2n\pi$  ( $n = 1, 2, \dots$ ). Das entspricht dem Freisetzen des Elektrons in einem Nulldurchgang des oszillierenden Feldes.

Für kurze Pulse, in denen das Elektron sich innerhalb der Pulsdauer kaum aus dem Laserfokus heraus bewegt, geht die Einhüllende des Feldes  $A(t)$  am Ende des Pulses gegen null, so dass die Zitterenergie  $U_p$  (2. Term in 1.4) ebenfalls null wird und damit nur die Driftenergie mit maximal  $2U_p$  übrig bleibt. In langen Pulsen kann das Elektron den Fokus verlassen bevor der Puls vorbei ist und gewinnt dabei die ponderomotive Energie als kinetische Energie. Dadurch liegt das klassische Maximum für die Photoelektronenenergie bei langen Pulsen bei  $3U_p$ . Ob ein Puls *kurz* oder *lang* ist hängt von der Größe des Fokus, der Pulsdauer und der Photoelektronenenergie ab. Bei sehr kurzen Pulse im obigen Sinne repräsentiert das Photoelektronenspektrum damit die Energie- und Winkelverteilung im Moment der Ionisation.

## 1.2 Mechanismen der Einfachionisation

Abhängig von der Intensität werden zwei Bereiche bei der Ionisation unterschieden. Bei niedrigen Intensitäten wird die Ionisation durch die Absorption von  $n$  Photonen beschrieben (Multiphotonionisation). Bei höheren Intensitäten dominiert das elektrische Feld des Lasers über das Atompotential. Es bildet sich eine Barriere, durch die das Elektron tunneln kann (Tunnelionisation). Unterschieden werden diese Bereiche durch den Keldysh-Parameter  $\gamma = \frac{\omega_{laser}}{\omega_{tunnel}} = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}}$ , wobei  $I_p$  das Ionisationspotential bezeichnet [Kel64]. Ist  $\gamma \gg 1$  ändert sich das Laserfeld schnell im Vergleich zur Tunnelzeit und der Prozess wird durch die Multiphotonionisation beschrieben. Bei  $\gamma \ll 1$  ändert sich das Feld, in der Zeit während der das Elektron tunnelt, kaum.

### 1.2.1 Multiphotonionisation

Wie oben erwähnt, versteht man unter Multiphotonionisation (MPI) die Ionisation durch die Absorption von  $n$  Photonen, so dass  $n \cdot \omega \geq I_p$  ist, wobei  $I_p(I)$  das Ionisationspotential im Laserfeld ist. Es können auch mehr Photonen als notwendig absorbiert werden. Man spricht dann von „above threshold ionization“ (ATI) [AFM<sup>+</sup>79]. Die zusätzlich aufgenommene Energie ist im Photoelektronenspektrum sichtbar (s. Abb. 1.2). Die Ionisationsrate  $w$  ist proportional zu  $w \propto I^n$ .

Da starke Lichtfelder nicht nur auf freie Elektronen wirken, sondern auch auf die im Atom gebundenen, werden im Allgemeinen alle Energieniveaus im Atom auf-

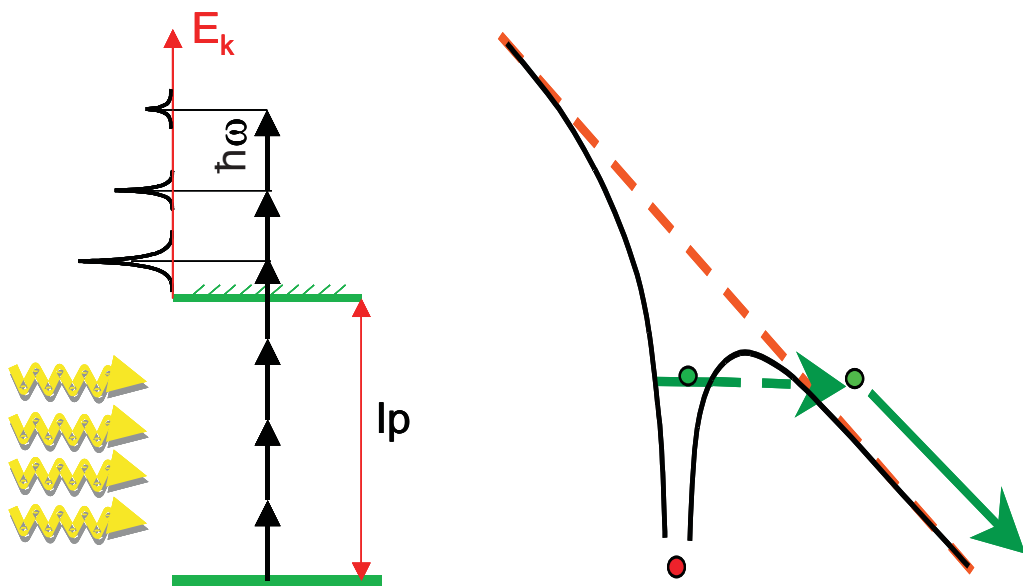
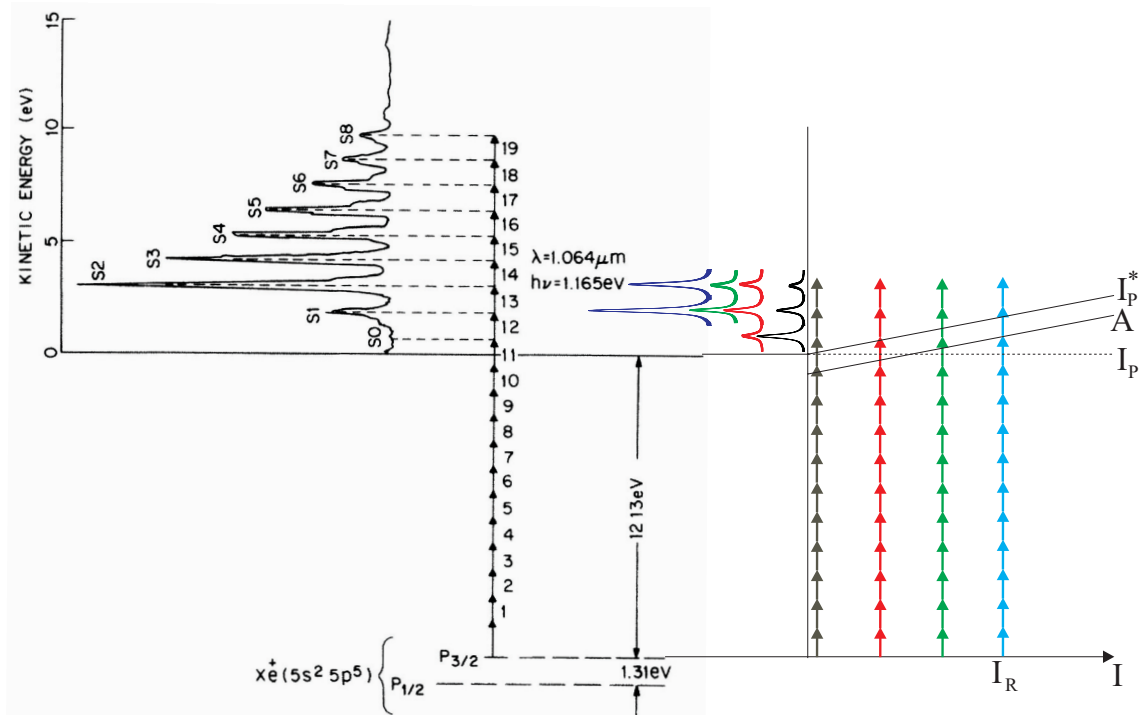


Abbildung 1.1: Schema der Multiphotonionisation und der Tunnelionisation.

grund der induzierten Polarisation (AC-Starkverschiebung) mehr oder weniger weit verschoben. Wie stark und in welche Richtung sich ein bestimmtes Energieniveau verschiebt, hängt von der Intensität und der Frequenz der Strahlung ab. Elektronen in Rydbergzuständen, die nur mit einem Bruchteil von 1 eV gebunden sind, verhalten sich dabei nahezu wie freie Elektronen, wohingegen tieferliegende Zustände mit mehreren eV Bindungsenergien wie zum Beispiel der Grundzustand kaum beeinflusst werden. Da die freien Elektronen im Laserfeld die Zitterenergie  $U_p$  haben, verschiebt sich auch die Kontinuumgrenze um  $U_p$  nach oben. Bei der Ionisation muss diese Energie deshalb zusätzlich aufgebracht werden. Ansonsten könnte das Elektron nicht in das Laserfeld freigesetzt werden [KKW81]. Deshalb die ist Photoelektronenenergie gegeben durch  $E_k = n\hbar\omega - I_p^*$ , wobei  $I_p^* \approx I_p + U_p$  das verschobene Ionisationspotential im Laserfeld ist.

In Intensitätsbereichen, in denen die Feldstärken noch deutlich unter den Feldstärken im Atom liegen, spielt das Energiespektrum des Atoms eine entscheidende Rolle. So kann zum Beispiel, einer der virtuellen Multiphotonübergänge (1-11 in Abb. 1.2)



**Abbildung 1.2:** Das Photoelektronenspektrum zeigt das Prinzip der ATI bei  $I = 2 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . Mehr Photonen als zu Ionisation notwendig sind, werden absorbiert, und führen zu Spitzen im Spektrum, die durch die Photonenenergie (hier 1,165 eV,  $\lambda = 1064 \text{ nm}$ ) separiert sind [FMBB86]. Der schematische Teil zeigt wie sich die Anteile am Spektrum auf die verschiedenen Intensitäten im Puls verteilen. Bei einer Resonanzintensität  $I_R$  wird der 11-Photonenübergang resonant, weshalb diese Intensität einem stark überhöhten Anteil am Spektrum hat.

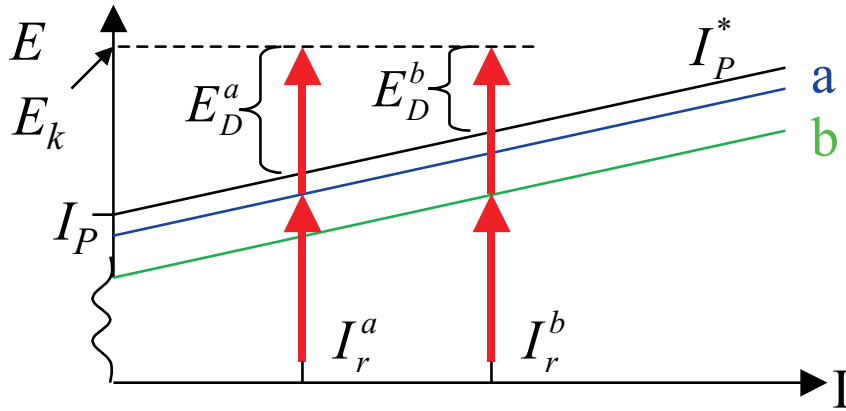


mit einem angeregten atomaren Niveau resonant sein, was die entsprechende Übergangswahrscheinlichkeit stark erhöht. Im Allgemeinen ist die Photonenenergie zunächst nicht resonant mit einem Übergang. Durch die AC-Starkverschiebung werden nun insbesondere die hohen Energieniveaus während des Pulses stark verschoben. Somit wird ein Resonanzverhalten nicht nur bezüglich der Energie (wie zum Beispiel in der Laserspektroskopie) der Photonen sondern auch als Funktion der Intensität des Lichtfeldes beobachtet [FBM<sup>+</sup>87], [HWW97], [MTW83], [MBT<sup>+</sup>93].

Solche von der Intensität abhängigen Resonanzen wurden von theoretischen Modellen, welche die AC-Stark-Verschiebungen beinhalten, vorhergesagt, und das Verständnis über sie ist wichtig, um die beobachteten Photoelektronenspektren zu beschreiben [Kel64], [GRT75]. Es ist allerdings nicht unbedingt klar, wie sich diese Resonanzen in den Spektren niederschlagen.

Abbildung 1.2 zeigt ein gemessenes Photoelektronenspektrum bei der Ionisation von Xenon mit langen Pulsen im obigen Sinne (s. Kapitel 1.1). Es sind 11 Photonen nötig, um Xenon zu ionisieren. Auffällig ist, dass die Ionisation mit 11 und 12 Photonen stark unterdrückt ist. Normalerweise sollte der 12-Photonenübergang unwahrscheinlicher sein als der 11-Photonenübergang und der 13-Photonenübergang noch viel unwahrscheinlicher. Allerdings ist aufgrund der Verschiebung der Ionisationsschwelle in Abhängigkeit von der Intensität die Ionisation durch die Absorption von 11 Photonen nur bei kleinen Intensitäten am Anfang oder Ende des Pulses möglich. Bei kleinen Intensitäten wiederum ist die Ionisationsrate ( $w \propto I^n$ ) sehr klein, was zu einem sehr kleinen Beitrag zum Gesamtspektrum führt. Außerdem ist der Anteil der kleinen Intensitäten an der gesamten zeitlichen und räumlichen Verteilung im Fokus klein. Mit ansteigender Intensität im Puls schließt sich der Kanal der 11-Photonenionisation („channel closing“) und öffnet sich erst wieder in der fallenden Flanke des Pulses („channel opening“). Das selbe passiert für den Kanal der 12-Photonenionisation. Allerdings schließt sich der 12-Photonenkanal bei höheren Intensitäten. Bei höheren Intensitäten steigt aber auch die Ionisationswahrscheinlichkeit. Daher ist der Beitrag der Ionisation durch die Absorption von 12 Photonen zum Gesamtspektrum größer. Die Messung in Abbildung 1.2 wurde bei einer Spitzenintensität von  $2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  durchgeführt. Die maximale Verschiebung der Ionisationsschwelle beträgt daher 2,1 eV. Deshalb war die Ionisationsschwelle in bei diesem Experiment niemals so stark verschoben, dass es nicht mehr möglich war mittels der Absorption von 13 Photonen ein Xenonatom zu ionisieren. Daher ist der Beitrag der 13-Photonenionisation in diesem Spektrum am größten, da die Absorption von noch mehr Photonen (durch keine Ionisationsschwellen gehindert) wieder unwahrscheinlicher ist.

Im schematischen Teil von Abbildung 1.2 ist beispielhaft gezeigt, wie bei einer Intensität  $I_R$  der 11-Photonenübergang mit einem hoch angeregten Zustand A re-



**Abbildung 1.3:** Die Abbildung zeigt Prinzip der Entstehung von Freeman Resonanzen. Bei verschiedenen Intensitäten, sind verschiedenen Rydbergzuständen zum einem  $m$ -Photonenübergang resonant. Der Unterschied in der kinetischen Energie entsteht durch Unterschied im Energieabstand der Rydbergniveaus zum Kontinuumniveau.

sonant wird. Das führt dazu, dass der Beitrag dieser Intensität zu den einzelnen ATI-Peaks stark überhöht wird. Da dafür eine bestimmte Intensität im Puls erreicht werden muss wird auch hier vom „channel opening“ gesprochen. Bei zunehmender Intensität im Puls schließt sich dieser Ionisationskanal wieder („channel closing“). Erst die Integration über alle möglichen Ionisationskanäle und die Berücksichtigung der oben beschriebenen Effekte aufgrund der Verschiebung der Ionisationsschwelle beschreibt das gemessene Photoelektronenspektrum. Dabei ist der Beitrag der Resonanzen, da sie sehr schmal in der Intensität sind, am Gesamtspektrum sehr klein.

Ein noch ganz anderer Effekt tritt bei kurzen Pulsen aufgrund von solchen Resonanzen auf: Innerhalb der ATI-Peaks sind noch schmalere Strukturen zu erkennen (s. Abb. 1.4). Die Ursache liegt darin, dass bei verschiedenen Intensitäten ein  $m$ -Photonenübergang mit verschiedenen Rydbergzuständen resonant sein kann. Die Abbildung 1.3 verdeutlicht das Prinzip.

Die Intensität im Laserfokus hat eine räumliche und zeitliche Verteilung und variiert von 0 bis zur Maximalintensität  $I_0$ . Bei einer Intensität  $I_r^a$  sei ein  $m$ -Photonenübergang vom Grundzustand zu einem angeregten Zustand  $a$  resonant. Bei dieser Intensität  $I_r^a$  ist das Kontinuum um  $U_p^a$  verschoben. Bei einer Intensität  $I_r^b$  ist ebenfalls ein  $m$ -Photonenübergang zum Zustand  $b$  resonant und das Kontinuum um  $U_p^b$  verschoben. Unter der Annahme, dass zur Ionisation ausgehend von den angeregten Zuständen  $a$  und  $b$  nur noch ein Photon zusätzlich nötig ist, beträgt die Driftenergie der emittierten Elektronen

$$E_D^a = (m + 1)\omega - (I_p + U_p^a) \quad (1.5)$$

$$\text{bzw. } E_D^b = (m + 1)\omega - (I_p + U_p^b). \quad (1.6)$$

Die Differenz in der kinetischen Driftenergie der Photoelektronen ist gerade der Unterschied in der Verschiebung der Kontinuumgrenzen  $U_p^a - U_p^b$  aufgrund der unterschiedlichen Intensitäten, bei denen die angeregten Zustände  $a$  und  $b$  mit dem  $m$ -Photonenübergang resonant sind. Die Gesamtenergie der bei den Intensitäten  $I_r^a$  bzw.  $I_r^b$  freigesetzten Elektronen ist gleich groß und beträgt:

$$E_k^a = E_k^b = E_D^a + U_p^a = E_D^b + U_p^b = (m + 1)\omega - I_p. \quad (1.7)$$

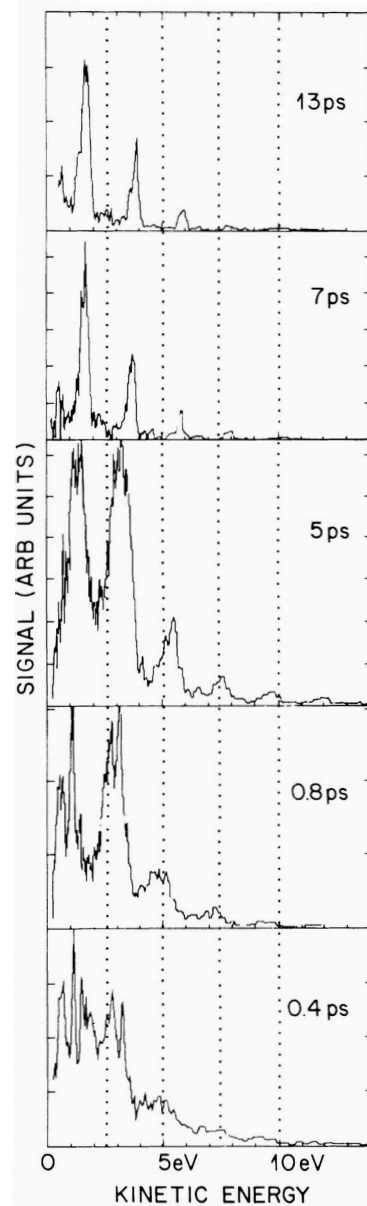
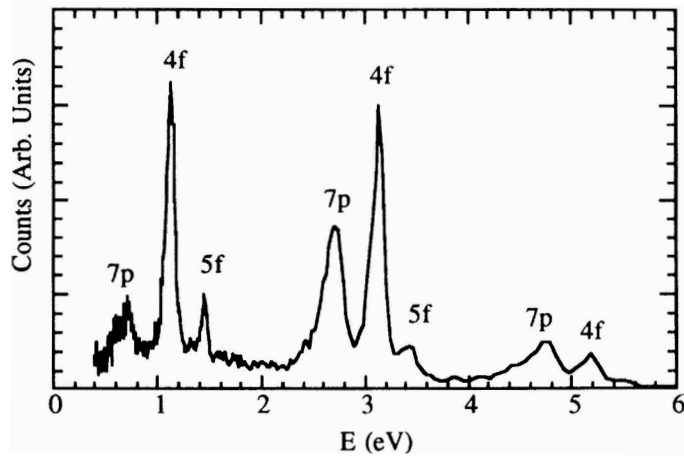
Für kurze Pulse geht die ponderomotive Energie  $U_p^a$  und  $U_p^b$  am Ende des Pulses gegen null (s. Kapitel 1.1). Übrig bleiben die verschiedenen Driftenergien  $E_D^a$  und  $E_D^b$ , was zu separierten Peaks innerhalb des  $m$ -Photonpeaks führt. Bei langen Pulsen gewinnen die Elektronen durch das Verlassen des Fokus während des Pulses (es wird Arbeit verrichtet) die ponderomotive Energie und nivellieren damit den Unterschied.

Wenn solche Resonanzen auftreten, kann die Ionisationsrate um Größenordnungen über der  $\omega \approx I^n$  Rate liegen, weshalb über diesen Mechanismus die Intensitätsabhängigkeit der Ionisationsrate auf die Energieverteilung der Elektronen abgebildet wird. Bei kurzen Pulsen entspricht der Abstand der Peaks im Photoelektronenspektrum, für eine vorgegebene Anzahl absorbierter Photonen, genau dem Abstand der atomaren Niveaus, die in während des Pulses in Resonanz geraten sind. So sind in hoch aufgelösten Photoelektronenspektren ganze Rydbergserien zu erkennen, die sich im Abstand der Photonenenergie wiederholen (s. Abb. 1.4).

Die linke Seite von Abbildung 1.4 zeigt den Übergang vom Langpulsregime zum Kurzpulsregime. Bei 13 ps sind nur die ATI-Peaks wie in Abb. 1.2 zu sehen. Bei kürzer werdenden Pulsen treten innerhalb der Peaks Resonanzen auf, die dann bei ganz kurzen Pulsen das Spektrum dominieren [FBM<sup>+</sup>87].

Diese schmalen Peaks können nur in sehr kleine Intensitätsintervallen produziert werden. Bei einem Puls mit der Spitzenintensität von  $I_0 > I_r$  wird nur für eine sehr kurze Zeit innerhalb der ansteigenden oder abfallenden Flanke des Pulses die Resonanzintensität  $I(t) \approx I_r$  erreicht. Nach dem Heisenbergschen Unschärfepinzipp würde das aber zu breiten Peaks in der Energieverteilung führen im Gegensatz zur Beobachtung. Allerdings könnten solche schmalen Resonanzen auch in Regionen entstehen, in denen die Spitzenintensität des Pulses (an dieser Stelle des Fokus) der Resonanzintensität entspricht. Dann wäre die Resonanzzeit und die Pulsdauer vergleichbar groß, da die Änderung der Intensität mit der Zeit am Scheitelpunkt des Pulses sehr klein ist. In einem gauss'schen Fokus ist eine solche Region eine dünne Schale um den Mittelpunkt des Fokus herum. Dieses Modell wird deshalb auch als Schalenmodell bezeichnet [MFCW89]. Es wurde allerdings in Frage gestellt, als nachgewiesen wurde, dass angeregte Zustände den Laserpuls überleben können [BM92]. Bei einem Pump-Probe Experiment zeigte das Photoelektronenspektrum neue Peaks, welche angeregten Zuständen zugeordnet werden konnten, welche im

Laserfeld eine Lebensdauer vergleichbar mit der Pulsdauer haben. Die Zustände werden bei der Resonanzintensität  $I_r$  populiert und nachdem diese einmal erreicht wurde, können die nun angeregten Elektronen während der ganzen noch verbleibenden Pulsdauer durch das Laserfeld ionisiert werden. Daher sind die resultierenden Peaks im Photoelektronenspektrum schmal. Allerdings ist die Intensität zum Zeitpunkt der Ionisation nicht mehr dieselbe wie bei der Anregung. Damit ist aber auch die Verschiebung des Kontinuums gegenüber dem angeregten Zustand beliebig. Aus diesem Grund sollten die Resonanzen, die durch langlebige Zustände entstehen, eigentlich verschwinden. Da nach heutigem Verständnis die angeregten Zustände meist hochliegende, von Licht stark modifizierte, Rydbergzustände sind,



**Abbildung 1.4:** Der rechte Teil der Abbildung zeigt ein Photoelektronenenergiespektrum für die Ionisation von Xenon bei  $6,2 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$  bei kurzen Pulsen. Zu sehen sind die einzelnen Rydbergresonanzen, die sich im Abstand der Photonenenergie (2 eV) wiederholen [MBT<sup>+</sup>93]. Der linke Teil zeigt die kinetische Energie der Photoelektronen bei der Einfachionisation von Xenon als Funktion der Pulslänge. Die Pulsenergie ist konstant und die Intensität steigt von  $\approx 1,2 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$  für 15 ps bis zu  $\approx 3,9 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$  bei 0.4 ps an. Zu sehen ist wie mit zunehmender Verkürzung der Pulsdauer Resonanzen auftreten [FBM<sup>+</sup>87].

und diese sich nahezu parallel zum Kontinuum verschieben, tauchen solche Resonanzen, die auch Freeman Resonanzen genannt werden, im Experiment auf [GFMM94].

Die Frage, was nun genau zu den Resonanzen führt, wurde lange diskutiert und

ist auch gerade in jüngster Zeit Gegenstand intensiver theoretischer Forschung. Momentan scheint sicher, dass das Schalenmodell den Vorgang korrekt beschreibt, aber angeregte Zustände lange im Laserfeld überleben können. Der Anteil dieses „population trappings“ hängt dabei von der Ionisationsrate des angeregten Zustands und vom zeitlichen Verlauf des Pulses ab.

### 1.2.2 Tunnelionisation

Bei höheren Pulsintensitäten dominiert das äußere Lichtfeld die Ionisationsdynamik und die Tunnelzeit wird kleiner als die Schwingungsdauer des Lichts. Das Elektron ist nun in der Lage, die durch das Laserfeld und das Atompotential gebildete Barriere zu durchtunneln (s. Abb. 1.1). Die Tunnelrate bei einer Feldstärke  $F(t)$  ist gegeben durch

$$w(t) = \frac{4(2I_p)^{5/2}}{F(t)} e^{-\frac{2(2I_p)^{2/3}}{3F(t)}}. \quad (1.8)$$

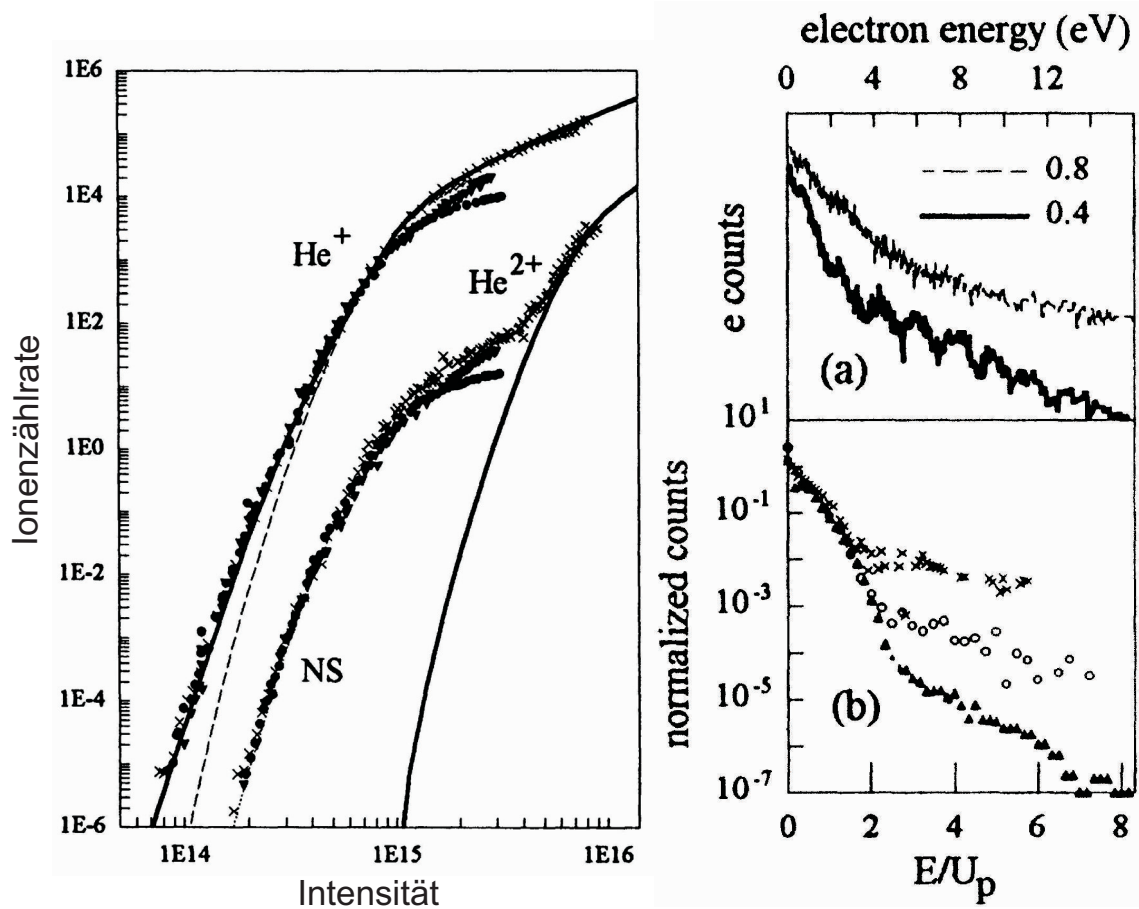
Die Mittelung über eine Laserperiode führt zur AC-Tunnelionisationsrate, die Basis der ADK-Theorie [ADK86], [DK91]. In Abbildung 1.5 zeigt die gestrichelte Linie die theoretische Vorhersage der ADK-Theorie. Sie stimmt für die Einfachionisation bei hohen Intensitäten, also im Tunnelregime ( $\gamma \ll 1$ ), sehr gut mit den Messwerten (Symbole) überein. Die Theorie unterschätzt allerdings die Ionenzählrate im niedrigen Intensitätsbereich zum Teil um Größenordnungen. Die durchgezogene Linie ist die Vorhersage einer single-active-electron (SAE) Näherung [SYDK93]. Sie beinhaltet die Tunnelionisation wie auch Multiphotonenionisation und gibt im gesamten Intensitätsbereich das Experiment richtig wieder.

Nachdem das Elektron freigesetzt wurde, wird seine weitere Dynamik durch das starke Lichtfeld bestimmt. Das Energiespektrum der Elektronen ergibt sich aus der Tunnelwahrscheinlichkeit und der Dynamik des Elektrons im Laserfeld. Mit der Definition einer Phase  $\phi_0 = \omega t_0$ , der Substitution von  $F(t)$  durch  $F_{max} \sin \phi_0$  in Gl. 1.8 und dem Ausdruck für die kinetische Energie unter der Annahme, dass die Anfangsenergie der getunnelten Elektronen gleich Null ist,  $E = 2U_p \cos^2 \phi_0$  (woraus folgt, dass  $\phi_0 = \arcsin \sqrt{1 - E/2U_p}$ ) ist das Energiespektrum parallel zur Polarisationsrichtung gegeben durch

$$\frac{dw}{dE} = \frac{dw}{d\phi_0} \frac{d\phi_0}{dE} = \frac{8\sqrt{2}}{\sqrt{E/U_p}} \frac{(2I_p)^{5/2}}{F_{max}(1 - E/2U_p)} e^{-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3F_{max}\sqrt{1 - E/2U_p}}} \quad [\text{BC89}]. \quad (1.9)$$

Unter der Annahme, dass das Elektron einen verschwindend geringen Anfangsimpuls hat, ergibt sich nach Gl. 1.2 ein longitudinaler Driftimpuls bei linearer Polarisation von

$$p(t_0) = \frac{1}{\omega} F_{max} \cos(\phi_0). \quad (1.10)$$



**Abbildung 1.5:** Links: Heliumionenzählrate für Einfach- und Doppelionisation bei 780 nm und 100 fs in Abhängigkeit von der Intensität. Die Symbole bezeichnen die Messdaten. Die gestrichelte Linie zeigt die Berechnungen für die AC-Tunnelionisation (ADK) und die durchgezogene Linie die SAE Näherung [SYDK93]. Die gemessenen Intensitäten wurden mit 1,15 multipliziert. Rechts: (a) zeigt das Heliumphotoelektronenspektrum bei 780-nm-Anregung für 0,4 und 0,8 PW/cm<sup>2</sup>. In (b) ist die Energie auf  $U_p$  normiert und gezeigt sind die Spektren für 0,2 (×), 0,4 (○) und 1,0 PW/cm<sup>2</sup> (△) [WSD<sup>+</sup>94].

Die Impulsspektren der Photoelektronen folgen aus der Tunnelwahrscheinlichkeit (Gl. 1.8) die vom Feld abhängt und den Betrachtungen zum Driftimpuls. Zu jeder Tunnelphase gibt es eine Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron tunnelt. Gleichung 1.10 ordnet jeder Phase einen Driftimpuls zu. Daraus ergeben sich die Verteilung der Driftimpulse:

$$w(p_{\parallel}) \propto e^{-\frac{p_{\parallel}^2 \omega^2 (2I_p)^{3/2}}{3F_{max}^3}}, \quad (1.11)$$

$$w(p_{\perp}) \propto e^{-\frac{p_{\perp}^2 (2I_p)^{1/2}}{F_{max}}}. \quad (1.12)$$

## 1.2. Mechanismen der Einfachionisation

---

Die Impulsverteilung senkrecht zur Polarisationsrichtung (Gl. 1.12) folgt dabei nicht aus Gleichung 1.10, da sich das Elektron in diese Richtung ungestört vom Laserfeld bewegen kann. Hier wurde die Impulsverteilung nach dem Tunnelvorgang selbst berücksichtigt.

Für die Impulsverteilung parallel zur Polarisationsrichtung (Gl. 1.11) wurde das elektrische Feld im Maximum entwickelt, da dort die Tunnelwahrscheinlichkeit am höchsten ist,

$$F_{max} \cos(\omega t) \approx F_{max} \left(1 - \frac{\omega^2 t^2}{2}\right) \quad [\text{CBB89}], \quad (1.13)$$

Die Beschleunigung durch das Feld  $F_{max}$  wurde mit  $t \approx \frac{p_{\parallel}}{F_{max}}$  linearisiert. Deshalb und aufgrund der Entwicklung des elektrischen Feldes in Gleichung 1.13 stimmt die Verteilung nur bei kleinen Impulsen und die  $2U_p$ -Grenze existiert nicht.

Die berechnete Energieverteilung der Photoelektronen allerdings ist auf maximal  $2U_p$  beschränkt. Die Übereinstimmung mit ersten vorliegenden Experimenten war qualitativ gut. Sie war jedoch durch die Sensitivität der Experimente beschränkt. Erst mit einer neuen Generation von Titan-Saphir-Laserverstärkern, die im kHz-Bereich arbeiten (s. Kapitel 2), wurde es möglich, Spektren bei der Ionisation von Helium mit einem großem Dynamikbereich in der Elektronenzählrate in Abhängigkeit der Energie aufzunehmen [WSD<sup>+</sup>94]. Abbildung 1.5(a),(b) zeigt die Photoelektronenenergien für verschiedene Intensitäten. Die qualitative Übereinstimmung mit der Verteilung in Gleichung 1.9 also das praktisch vollständige Verschwinden von ATI und Resonanzstrukturen ist auch hier gegeben. Mehr als 99% der Elektronen haben Energien kleiner als  $2U_p$  (Abb. 1.5(b)). Deutlich ist aber auch eine Abweichung von diesem einfachen Modell zu erkennen. Es scheint eine Art Plateau jenseits von  $2U_p$  zu geben.

Das Regime der Tunnelionisation ist vor allem dadurch gekennzeichnet, dass die bei der Multiphotonionisation prominenten ATI-Peaks im Photoelektronenspektrum verwischen und schließlich bei hohen Intensitäten vollständig zu verschwinden scheinen, wie in Abbildung 1.5(b) deutlich zu sehen ist (näheres dazu in Kapitel 3.2). Das ist verwunderlich, denn die Tunnelwahrscheinlichkeit ist in den Feldspitzen des elektromagnetischen Wechselfeldes immer am höchsten, so dass mit einer Periode von  $T = \frac{2\pi}{\omega}$  Teile des Elektronenwellenpakets tunneln und damit emittiert werden. Diese Teilwellen interferieren und sollten zu den erwähnten ATI-Peaks im Spektrum führen. Allerdings führt die im Gegensatz zur Multiphotonionisation schwache Abhängigkeit der Ionisationsrate von der Intensität bei diesen hohen Intensitäten und die sehr große ponderomotive Verschiebung dazu, dass die Resonanzen verwaschen, wenn wie bei den meisten Experimenten über die gesamte räumliche Verteilung des Laserfokus gemittelt wird. Die Mittelung über den zeitlichen Verlauf ist unvermeidbar.

### 1.2.3 Rückstreuung

Die experimentell beobachtete Abweichung der Elektronenenergieverteilung von Gleichung 1.9, speziell jenseits von  $2U_p$  [WSD<sup>+</sup>94], [PBNW94], führte zur Einführung des Rückstreumechanismus in die Theorie: zunächst in Form des „Simpleman’s model“ (s. Kapitel 1.1) [SYDK93], [Cor93], später in Form der quantenmechanischen KFR-Theorie [BLK94] und schließlich im Rahmen eines semiklassischen Modells [LKS95].

Das Prinzip des Rückstreumechanismus beruht auf der Möglichkeit des Elektrons abhängig von seiner Phase, zu der es freigesetzt wurde, zum Ion zurückzukehren. Die Analyse der Gleichungen 1.2 und 1.3 zeigt, dass die Tunnelphasen, bei denen das Elektron zum Ion zurückkehrt, innerhalb der Grenzen  $n\pi/2 \leq \phi_0 < (n+1)\pi/2$  für ungerade  $n$  liegen. Nach der Rückkehr zum Zeitpunkt  $t_r$  kann es am Ion elastisch unter dem Winkel  $\theta$  bezüglich seiner ursprünglichen Richtung gestreut werden. Die Geschwindigkeitskomponenten sind dann

$$\dot{z}(t) = -2\sqrt{U_p}((\cos \omega t - \cos \omega t_r) + \cos \theta(\cos \omega t_r - \cos \phi_0)) \quad (1.14)$$

$$\dot{y}(t) = -2\sqrt{U_p} \sin \theta(\cos \omega t_r - \cos \phi_0). \quad (1.15)$$

Die kinetische Energie der Elektronen parallel zur Polarisationsrichtung des Lasers, die am Detektor außerhalb des Feldes gemessen wird, entspricht der zeitlich gemittelten Energie im Feld  $E = \frac{1}{2}\langle \dot{z} \rangle^2$ :

$$E = 2U_p(-\cos \omega t_r + \cos \theta(\cos \omega t_r - \cos \phi_0))^2. \quad (1.16)$$

Die ponderomotive Energie  $U_p$  für die Zitterbewegung des Elektrons im Feld wurde abgezogen, da die Betrachtungen hier für kurze Pulse gelten sollen.

Der erste Term  $-2\sqrt{U_p}(\cos \omega t - \cos \omega t_r)$  in Gl. 1.14 ähnelt der normalen Driftenergie mit einer neuen Phase  $\phi_r = \omega t_r$ . Der zweite Term  $-2\sqrt{U_p}(\cos \theta(\cos \omega t_r - \cos \phi_0))$  bezeichnet die Projektion der anfänglichen Rückstreugeschwindigkeit auf die Richtung der Laserpolarisation nach der Kollision. Das Elektron kann also durch die Streuung zusätzliche Driftenergie aufnehmen. Im Allgemeinen ist die Analyse von Gleichung 1.16 aufgrund der Abhängigkeit der Rückstreuphase  $\phi_t$  von der Tunnelphase  $\phi_0$  nur numerisch möglich. Allerdings ist es zum Beispiel schon durch eine graphische Analyse möglich einige Aussagen zu treffen. Zum Beispiel kehren Elektronen, die bei Tunnelphasen  $\frac{1}{2}\pi < \phi_0 < \pi$  geboren werden, bei Phasen im Bereich  $\frac{5}{2}\pi < \phi_r < \frac{7}{2}\pi$  zum Ion zurück. Die Zeitspanne vom Freisetzen des Elektrons bis zur Rekollision ist damit zum Teil kürzer als die Schwingungsdauer des Feldes. Das Maximum für die Energie der Elektronen bei der Kollision liegt dabei bei  $3,17U_p$



für Elektronen, die bei einer Phase von  $\approx 107^\circ$  getunnelt sind und damit kurz nach dem Erreichen des Maximums der elektrischen Feldamplitude. Das heißt, dass der Term  $(\cos \omega t_r - \cos \phi_0)$  in Gl. 1.14, welcher den Driftimpuls, den das Elektron bis zur Rückstreuung aufnehmen kann, beschreibt, maximal einen Beitrag von  $\sqrt{3.17U_p} = \sqrt{2U_p}(\cos \omega t_r - \cos \phi_0)$  zu der Energie in Gl. 1.16 leisten kann. Elektronen die nahe der Phase geboren wurden, welche zur maximalen Energie von  $3.17U_p$  führt, kehren bei einer Phase zum Ursprung zurück, bei der das elektrische Feld klein ist (s. Abb. 1.8). Diese Situation entspricht dem Maximalwert des Terms  $-\cos \omega t_r$  in Gl. 1.16 ( $\phi_r = \omega t_t \approx \pi$ ). Wenn die Elektronen bei dieser Phase  $\phi_r$  unter einem Winkel von  $\theta = 180^\circ$  elastisch gestreut werden, beschleunigt das Feld die Elektronen noch einmal nahezu einen halben Zyklus. Sie gewinnen dadurch noch mal den Driftimpuls von  $2\sqrt{U_p}$ . Daraus folgt, dass die maximale Energie der Photoelektronen  $(\sqrt{2U_p} - \sqrt{3.17U_p})^2 \approx 10U_p$  für kurze Pulse beträgt. Für lange Pulse kommt noch die ponderomotive Energie dazu  $E_{max} \approx 11U_p$  (s. Kapitel 1.1). Das ist weit mehr als die aus der einfachen Rechnung folgenden  $2U_p$ . Die Vorhersage des Limits bei  $10U_p$  wird bis jetzt von allen Experimenten bestätigt. Unter der Annahme, dass die Elektronen am Ion isotrop in alle Richtung gestreut werden, läßt sich auch die Form des Plateaus von  $2 - 10U_p$  erklären.

In der Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung unter Verwendung der Einzelelektronennäherung (TDSE-SAE; siehe durchgezogene Linie im Ionenzälratenspektrum in Abbildung 1.5 rechts) ist dieser Mechanismus a priori enthalten. Die quantenmechanische Natur dieser Rechnung schließt auch Aspekte wie Multiphotonenionisation und Tunneln mit ein. Die zeitliche Integration über die gesamte Pulsdauer sorgt dafür, dass auch Effekte „nach der Ionisation“ wie die Rückstreuung in Anwesenheit des Feldes berücksichtigt werden [KSK92].

Zusätzlich wurden im Plateau auch resonanzartige Strukturen gefunden [PNX<sup>+</sup>94], [HWW97], [HBM97]. Diese werden auf unterschiedliche Quantenpfade zurückgeführt, die ein Elektronen nach der Ionisation im Feld bis zur Streuung zurücklegen kann [Mul99a], [MK98], [PGW01]. Die resultierenden quantenmechanischen Phasen unterscheiden sich, und so führt die Interferenz der Pfade zu einer Struktur im Photoelektronenspektrum. Die Quantenpfade und damit auch die Strukturen hängen stark von der Elliptizität des Lichtes und der Intensität ab.

## 1.3 Mechanismen der Mehrfachionisation

Das Problem der Doppel- bzw. Mehrfachionisation ist bei weitem komplexer als das der Einfachionisation. Der einfachste Ansatz sich diesem Problem zu nähern, besteht darin anzunehmen, dass die Doppel- oder auch Mehrfachionisation eine Aneinanderreihung voneinander völlig unabhängiger Einfachionisationsereignisse mit

jeweils steigendem Ionisationspotential darstellt. Diese Art der Mehrfachionisation wird „sequentielle“ Mehrfachionisation genannt. Erste Messungen zur Doppelionisation von Edelgasen wurden von [FBCK93], [KST<sup>+</sup>93] und [WMY<sup>+</sup>93] durchgeführt. Abbildung 1.5 zeigt die Doppelionisationsrate von Helium in Abhängigkeit der Intensität [WSD<sup>+</sup>94]. Die durchgezogene Linie ist die Rate, die auf Basis der sequentiellen Doppelionisation theoretisch zu erwarten wäre. Bei hohen Intensitäten ( $> 5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ) scheint die sequentielle Doppelionisation der dominante Mechanismus zu sein, da die Theorie die beobachtete Doppelionisationsrate dort gut wiedergibt. Bei niedrigeren Intensitäten wird das Experiment jedoch um mehrere Größenordnungen unterschätzt. In diesem Bereich („Knie“) scheinen somit Korrelationen zwischen den Elektronen wichtig zu sein, die offensichtlich zu einer starken Überhöhung der Ionisationswahrscheinlichkeit führen können.

Lange Zeit war umstritten wie solche Wechselwirkungen im nichtsequentiellen Regime im Detail aussehen sollten. Unstrittig war lediglich, dass die Elektron-Elektron-Wechselwirkung eine entscheidende Rolle spielen musste. Zur Erklärung des „Knies“ wurden in der Vergangenheit in der Literatur im wesentlichen die folgenden Prozesse diskutiert:

### Rückstreumechanismus

Ein vorgeschlagener Mechanismus beruht auf der in Kapitel 1.2.3 vorgestellte Rückstreuung des Elektrons [Cor93]. Nach der Tunnelionisation wird das Elektron im oszillierenden Laserfeld zunächst vom Restion weg beschleunigt, dann jedoch zum Ion zurückgedrückt, sobald der elektrische Feldvektor der Lichtwelle im nächsten Halbzyklus seine Richtung ändert. Dann hat es wie bei der Einfachionisation die Möglichkeit elastisch zu streuen. Es kann aber auch inelastisch streuen und in einem so genannten (e,2e) Prozess ein zweites Elektron stoßionisieren. Dazu braucht es mindestens die Ionisationsenergie für das zweite Elektron ( $\geq 54.4 \text{ eV}$  für  $\text{He}^{1+} \rightarrow \text{He}^{2+}$ ). Ein Elektron, welches zur Phase  $\phi_0 = 107^\circ$  tunnelionisiert wurde, erreicht das Ion mit der maximalen Energie von  $3,17U_p$ . Diese skaliert also mit der Intensität, so dass es eine Grenzintensität geben sollte, unterhalb derer nichtsequentielle Doppelionisation aufgrund einer Rückstreuung nicht mehr auftritt. Diese ist aber nach heutiger Kenntnis nicht vorhanden. Das Nichtvorhandensein einer solchen Schwelle wurde immer als eine der wesentlichen Schwächen dieses Modells, welches ansonsten die Ionisationsrate sehr gut beschreibt, angesehen. Jüngste differentielle Messungen unterhalb der klassischen Schwelle [ELR<sup>+</sup>03] weisen darauf hin, dass das Ionisationspotential zum Zeitpunkt des (e,2e)-Stoßes im Laserfeld kleiner ist als beim feldfreien Stoß. Das würde das Nichtvorhandensein einer Schwelle erklären. Der Übergang zur Multiphotondoppelionisation ist jüngst experimentell bei der Doppelionisation von Xenon beobachtet worden [RCA<sup>+</sup>04] ist aber theoretisch noch nicht geklärt.

### „Shake off“

Ein anderer denkbarer Mechanismus, der lange in der Diskussion stand, ist „Shake off“ eines zweiten Elektrons [FBCK92]. Dieser Mechanismus ist der dominante Beitrag zur Doppelionisation von Atomen und Molekülen nach Absorption eines hochenergetischen Photons sowie durch Beschuss mit sehr schnelle geladenen Teilchen [Mit66], [WHH<sup>+</sup>91], [McG97]. Bei diesem Mechanismus wird angenommen, dass ein Elektron „plötzlich“ freigesetzt wird und das Atom sehr schnell verlässt. Die Wellenfunktion des passiven, gebundenen Elektrons ist in der „Sudden approximation“ nach der Einfachionisation kein Eigenzustand des neuen Hamiltonian und hat somit einen Überlapp mit dem Kontinuum. Das heißt, es wird mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit (bei der Photodoppelionisation von Helium etwa 1%) ein weiteres Elektron emittiert.

### Kollektives Tunneln

Ein weiterer vorgeschlagener Mechanismus ist das „kollektive Tunneln“ [EDM<sup>+</sup>00], bei dem davon ausgegangen wird, dass möglicherweise mehrere Elektronen zugleich durch die vom Atom- und Laserpotential gebildete Barriere tunneln. Um dies zu beschreiben, wird in der ADK-Tunnelformel (Gl. 1.8) das Ionisationspotential durch die totale Bindungsenergie der tunnelnden Elektronen ersetzt  $I_{p_{tot}} = \sum_N I_{p_j}$ , so dass die Tunnelwahrscheinlichkeit durch

$$w(t) \propto e^{-\frac{2(2I_{p_{tot}})^{2/3}}{3\sqrt{NF(t)}}} \quad (1.17)$$

gegeben ist. Das  $N$  im Exponenten gibt die Anzahl der tunnelnden Elektronen an (Im Exponenten steht im Zähler  $\sqrt{m_e}$  und im Nenner die Ladung  $e$ . Da in atomaren Einheiten die Masse und die Ladung des Elektrons  $q = m_e = 1$  gleich eins sind, ist der Faktor  $N$  nicht sofort ersichtlich). Mit  $I_{p_{eff}} = I_{p_{tot}}/N$  lässt sich die Exponentialfunktion zu

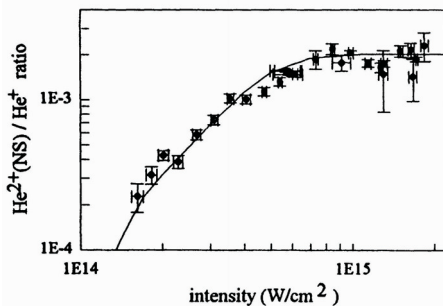
$$e^{-\frac{2N(2I_{p_{eff}}/N)^{2/3}}{3F(t)}} \quad (1.18)$$

umschreiben. Damit unterscheidet sich die Tunnelrate, abgesehen von den Vorfaktoren, nur durch den Faktor  $N$  im Exponenten und die Substitution des Ionisationspotentials  $I_p \rightarrow I_{p_{eff}}$ . Unter den oben gemachten Annahmen, dass das Ionisationspotential sich als Summe der einzelnen Bindungsenergien ausdrücken lässt und die Masse sowie die Ladung des Elektrons einfach mit der Anzahl der tunnelnden Elektronen skaliert, stellt die Gleichung 1.17 die Tunnelwahrscheinlichkeit eines Quasiteilchens mit der  $N$ -fachen Masse und Ladung dar. Allerdings liegt die vorhergesagte Ionisationsrate im nichtsequentiellen Intensitätsbereich nur unwesentlich über der Rate, welche die Theorie für sequentielle Ionisation vorhersagt und ist damit

um Größenordnungen kleiner als die beobachtete Rate. Auch komplexere Rechnungen wie die Lösung der eindimensionalen Schrödingergleichung für Helium kamen auf die selbe, viel zu niedrige Ionisationsrate für die Doppelionisation [EDM<sup>+</sup>00].

Welcher der Mechanismen nun die führende Rolle bei der nichtsequentiellen Ionisation spielt, und ob es überhaupt einen einzigen dominanten Mechanismus gibt, stand lange Zeit in der Diskussion. Gegen die Rückstreuung sprach unter anderem das Nichtvorhandensein einer Grenzintensität (s. o.). Allerdings ist es auch möglich das gebundene Elektron beim Stoß nur anzuregen und anschließend zu ionisieren. In diesem Fall wäre die Grenzintensität viel niedriger. Ein weiteres Indiz, welches lange gegen die „Rückstreuung“ als dominanten Mechanismus sprach, ist die Verbreiterung des Wellenpakets des Elektrons. Nach der Tunnelionisation hat das Wellenpaket eine geschätzte Ausdehnung von einigen atomaren Einheiten  $a_0 \approx 3 - 4$  a.u. (atomare Einheiten: s. Kapitel A.1). Wird die Wechselwirkung mit dem Ion zunächst vernachlässigt, so verhält sich das Wellenpaket in der zur Feldrichtung des Lasers senkrechten Richtung wie ein freies Gauss'sches Wellenpaket und läuft mit der Zeit auseinander. Die Ausdehnung zum Zeitpunkt  $t_r$  ist gegeben durch

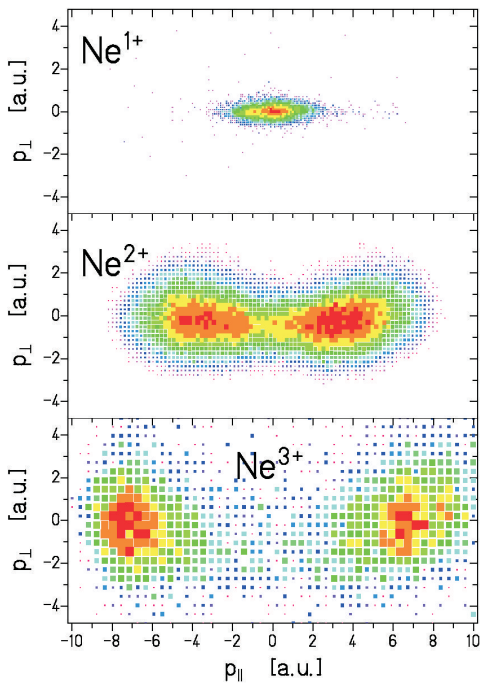
$$a_{t_r} = a_0 \sqrt{1 + \frac{4t_r^2}{a_0^4}}. \quad (1.19)$$



**Abbildung 1.6:** Intensitätsabhängigkeit des  $\text{He}^{2+}/\text{He}^+$  Verhältnisses. Die durchgezogene Linie ist eine Modelrechnung. Die gemessene Intensität wurde mit einem Faktor 1,15 multipliziert [WSD<sup>+</sup>94].

Die Zeit bis zur Rückkehr zum Ion beträgt ungefähr einen halben Zyklus (54 a.u.). Das Wellenpaket hat dann eine Ausdehnung von 27 – 36 a.u. Der  $\text{He}^+$  Ionisationsquerschnitt für Elektronenstoß hat sein Maximum von  $5 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$  bei einer Energie von 130 eV [Lot68]. Der Wirkungsquerschnitt für die Anregung zur  $n = 2$  Schale ist an der Schwelle von 41 eV vergleichbar groß und nimmt mit höherer Elektronenenergie ab. Anregungen zu höheren Zuständen, haben kleinere Wirkungsquerschnitte [PG92]. Deshalb scheint es gerechtfertigt zu sein einen totalen Wirkungsquerschnitt für Anregung und Stoßionisation zusammen von  $5 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$  anzunehmen. Damit beträgt der Stoßparameter, bei dem das zweite Elektron ionisiert werden kann, 0,26 a.u. Bei Verwendung eines Wellenpakets mit einer Ausdehnung von 30 a.u. und unter Berücksichtigung einer minimal notwendigen Energie für die Anregung von 41 eV beträgt das Verhältnis von Einfach zu Doppelionisation bei hohen Intensitäten von  $I \geq 10^{15} \text{ W/cm}^2$   $\text{He}^+/\text{He}^{2+} = 1,5 \times 10^{-4}$ . Diese obere Abschätzung ist mehr als eine Größenordnung kleiner als das gemessene Verhältnis (s. Abb. 1.6).

Solche einfachen und groben Abschätzungen waren lange Zeit ein Grund dafür der Rückstreuung bei der Doppel- und Mehrfachionisation nicht allzu starke Bedeutung beizumessen. Bei diesen stark vereinfachten Betrachtungen wurde nicht zuletzt die Wechselwirkung des Elektronenwellenpakets mit dem Restion vernachlässigt, welches in der Lage ist, das Wellenpaket zu refokussieren, und damit den totalen Wirkungsquerschnitt signifikant zu erhöhen [BIC96], [MK98].



**Abbildung 1.7:** Die zweidimensionale Impulsverteilung ( $p_{\parallel}$ ,  $p_{\perp}$ ) von  $\text{Ne}^{n+}$ -Ionen bei einer Spitzenintensität von  $1,3 \text{ PW/cm}^2$  ( $\text{Ne}^{1+}$ ,  $\text{Ne}^{2+}$ ) und  $1,5 \text{ PW/cm}^2$  ( $\text{Ne}^{3+}$ ). Über die dritte Koordinate wurde integriert. Rot rot kennzeichnet viele Ereignisse und blau bzw. lila wenige. Die Kästchengröße skaliert ebenfalls mit den Anzahl der Ereignisse.

tromagnetische Feld vernachlässigbar klein ist (nicht relativistisch), stellt die Impulsverteilung des Ions die Verteilung des Summenimpulses aller jeweils emittierten Elektronen dar. Deutlich ist zu sehen, dass die Impulse für die Einfachionisation um den Ursprung herum verteilt sind, und die Verteilung sowohl transversal ( $p_{\perp}$ ) als auch parallel ( $p_{\parallel}$ ) zur Laserpolarisation bei kleinen Impulsen ihr Maximum hat, wie die Gleichungen 1.11 und 1.12 vorhersagen. Im Gegensatz dazu zeigt sich bei der Mehrfachionisation bei kleinen Impulsen ein klares Minimum in der Verteilung.

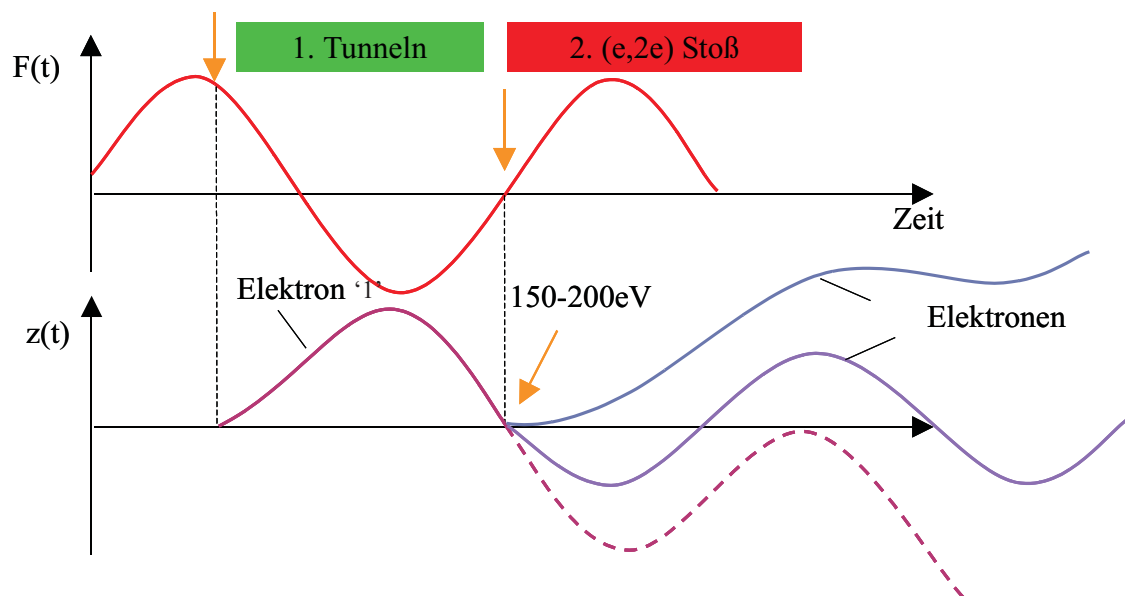
Die endgültige und inzwischen durchgehend akzeptierte Klärung der Frage, welches der dominante Mechanismus ist, der zur nichtsequentiellen Doppelionisation führt, und ob ein solcher überhaupt existiert, gelang erst mit Experimenten, die in der Lage waren differentielle Wirkungsquerschnitte aufzunehmen. Dies gelang durch die Kombination von Reaktionsmikroskopen (s. Kapitel 3.1, [UMD<sup>+</sup>03]) mit Titansaphirlaserverstärkern (s. Kapitel 2), die mit Repetitionsraten im Kilohertzbereich arbeiten.

In Abbildung 1.7 ist die zweidimensionale Impulsverteilung des Ions bei der Einfach-, Doppel- und Dreifachionisation von Neon zu sehen [MFS<sup>+</sup>00]. Die Intensität wurde dabei so gewählt, dass sie im Bereich des „Knies“ bei der Doppel- bzw. Dreifachionisationsrate liegt (s. Abbildung 1.5)<sup>1</sup>, so dass es sich um nichtsequentielle Mehrfachionisation handelt. Da der Gesamtimpuls erhalten bleibt, und der Übertrag durch die absorbierten Photonen bzw. durch das elek-

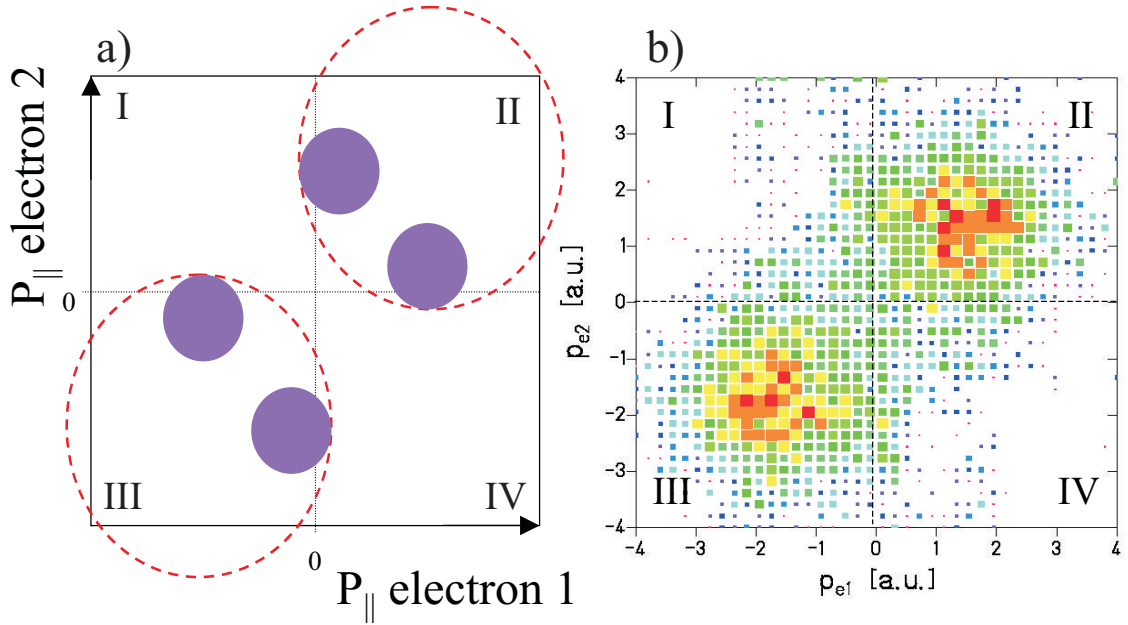
<sup>1</sup>Die Doppel- wie auch die Mehrfachionisationsraten der verschiedenen Edelgase verhalten sich als Funktion der Intensität qualitativ sehr ähnlich (s. Abb. 1.11).

Wie zuvor beschrieben, beruht der „Shake off“ darauf, dass die Wellenfunktion der zurückgebliebenen Elektronen „plötzlich“ einen Überlapp mit dem Kontinuum hat und die zweite Ionisation gleichzeitig mit der ersten stattfindet, also bevorzugt zu Phasen im Feld zu denen auch die Einfachionisation wahrscheinlich ist, und damit in den Feldmaxima. Gemäß Gleichung 1.2 erhält ein Elektron oder Ion, das in der Nähe eines Maximums des elektrischen Wechselfeldes ( $\phi = \pi/2$ ) ionisiert wird, einen sehr kleinen Driftimpuls, so dass also eine der Einfachionisation ähnliche Verteilung mit einem Maximum bei  $p_{\parallel} = p_{\perp} = 0$  erwartet wird. Das gleiche gilt für „kollektives Tunneln“. Dies steht in starkem Gegensatz zu den Messungen. Mit diesen Daten, war es damit erstmals möglich sowohl „Shake-off“ als auch „kollektives Tunneln“ als Mechanismen, die einen nennenswerten Anteil zur Doppel- und Mehrfachionisation liefern, auszuschließen.

Im Gegensatz dazu werden beim Rückstreumechanismus hohe Elektronen- bzw. Ionenimpulse erwartet. Das Elektron kehrt nur zum Kern zurück, wenn die Phase, bei der es tunnelt, zwischen  $\pi/2 \leq \phi < \pi$  liegt (s. Kapitel 1.2.3). Bei einer Phase von  $107^\circ$  kommt das Elektron mit der maximalen kinetischen Energie von  $3.17U_p$  zum Kern zurück. Für alle Tunnelphasen für die das zurückkommende Elektron genügend Energie für die Stoßionisation aufweist, ist das elektrische Feld zum Zeitpunkt des (e,2e) Stoßes sehr klein. Nach Gleichung 1.10 führt das zu hohen Driftimpulsen für



**Abbildung 1.8:** Schematische Darstellung des Rückstreumechanismus. Das Elektron kehrt mit einer maximalen Energie von  $3.17U_p$  zur Ion zurück. Dabei wird ein Elektron in einem (e,2e) Prozess ionisiert. Da bei der Rückkehr das elektrische Feld klein ist, sind nach Gl. 1.2 die Driftimpulse der Elektronen relativ hoch. Gestrichelte Linie: ungestörte Driftbewegung des getunnelten Elektron „1“; Blaue Linien: Driftbewegung der beiden Elektronen nach der Stoßionisation.



**Abbildung 1.9:** Die Impulskorrelation der beiden Elektronen entlang der Polarisationsrichtung ( $\parallel$ ) bei der Doppelionisation. Abbildung a) Blaue Fläche: die erwarteten korrelierten Impulse (s. Text); Abbildung b) zeigt die gemessene Korrelation bei der Doppelionisation von Neon ( $1 \text{ PW/cm}^2$ ) [MUF<sup>+</sup>03].

das doppelt geladene Ion, was auch in den Spektren erkennbar ist (s. Abb. 1.8).

Allerdings sind im Rahmen einer Vielteilchenstörungstheorie diese vorgestellten Mechanismen nur drei Amplituden, von denen es prinzipiell unendlich viele gibt. Nachdem die „Rückstreuung“ als dominanter Mechanismus unter den zahlreichen Amplituden der Störungsrechnung zur nichtsequentiellen Doppelionisation bei Neon identifiziert wurde, stellt sich als nächstes die Frage nach der Korrelation der beiden emittierten Elektronen. Von feldfreien ( $e, 2e$ ) Experimenten mit ähnlichen Projektilenergien ( $100 - 300 \text{ eV}$ ) ist bekannt, dass nach dem Stoß eine stark asymmetrische Impulsverteilung der beiden Elektronen vorherrscht [LB91]. Unter Einbeziehung der nach dem Stoß vom Laserfeld auf die Elektronen übertragenen Driftimpulse wäre dann eine korrelierte Impulsverteilung der beiden Elektronen zu erwarten, wie sie in Abbildung 1.9a) skizziert ist (blaue Flächen). Aufgetragen sind die Impulse der beiden Elektronen parallel zur Polarisationsrichtung des Lasers, wie sie bei der Doppelionisation von Neon beobachtet werden (s. Abb. 1.9(b)). Bei Ereignissen in den Quadranten II und III werden die beiden Elektronen in die selbe Hemisphäre emittiert. Ereignisse in den Quadranten I und IV bedeuten, dass Elektronen in unterschiedliche Hemisphären auslaufen. Für die Elektronenimpulse parallel zur Polarisationsrichtung gilt

$$p_{1\parallel}^2 + p_{2\parallel}^2 \leq 2(E_r - I_p^+) = E_{exc}, \quad (1.20)$$

wobei  $E_r$  die Energie bezeichnet, die das rückstreuende Elektron beim Stoß hat und  $I_p^+$  das Ionisationspotential des einfach geladenen Ions ist. Die Energie  $E_{exc}$  ist auf ein Maximum von  $3,17U_p - I_p^+$  beschränkt (s. Kapitel 1.2.3). Ohne das Laserfeld würde damit der kinematisch erlaubte Bereich einen Kreis um den Ursprung mit dem Radius  $\sqrt{2E_{exc}}$  im Korrelationsspektrum bilden. Die Amwesenheit des Laserfeldes führt zu einem zusätzlichen für beide Elektronen identischen Driftimpuls. Der Mittelpunkt des Kreises verschiebt sich dementsprechend entlang der Diagonalen  $p_{1\parallel} = p_{2\parallel}$  um diesen Driftimpuls in beide Richtungen. Diese kinematisch erlaubten Grenzen sind mit den roten Kreisen gekennzeichnet.

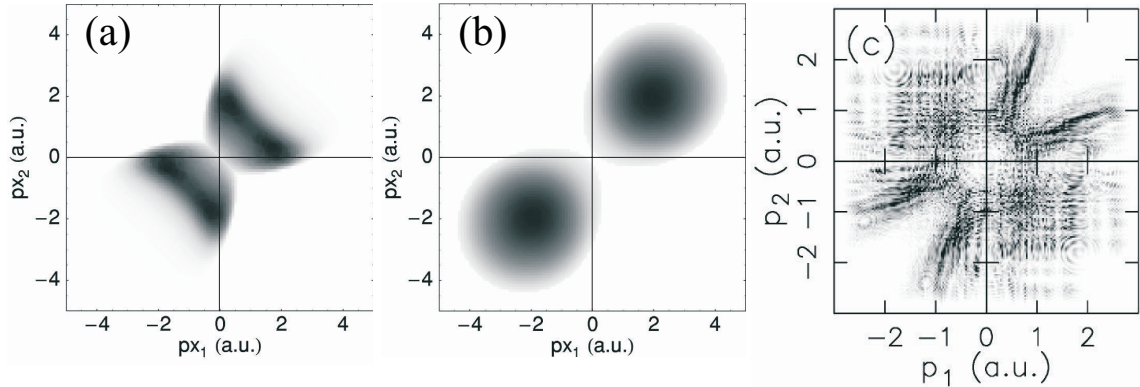
Entgegen der Erwartung wurde eine Verteilung gemessen, wie sie in Abbildung 1.9b) zu sehen ist (Neon Doppelionisation bei  $1 \text{ PW/cm}^2$ ) [MUF<sup>+</sup>03]. Überraschenderweise treten am häufigsten Ereignisse auf, bei denen die Elektronen mit ähnlichem Impuls parallel zur Polarisationsrichtung in die selbe Hemisphäre fliegen.

Der Ursprung dieser Beobachtung ist nach wie vor unverstanden. Um das Problem zu lösen wurden unterschiedliche theoretische Ansätze verfolgt. Abbildung 1.10 zeigt verschiedene Simulationsergebnisse für die Doppelionisation von Neon und Helium. Aufgetragen ist bei allen die Verteilung der Elektronenimpulse parallel zur Laserpolarisation. Abbildung (a) und (b) zeigen die Ergebnisse einer S-Matrix Rechnung für Neon, die den Rückstreumechanismus berücksichtigt, bei einer Intensität von  $6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  [GPKB01]. Als Ionisationspotential des Zweielektronen-Modellatoms wurde das von Neon angenommen. In (a) wurde die Coulombwechselwirkung der Elektronen untereinander in der ersten Born'schen Näherung berücksichtigt. Die Elektronenimpulsverteilung entspricht nicht der Gemessenen in Abbildung 1.9b). Die Ereignisse liegen zwar mehrheitlich in den Quadranten II und III, das heißt, die Elektronen werden wie im Experiment in die gleiche Hemisphäre emittiert, die Maxima der Verteilung allerdings liegen neben der Hauptdiagonalen, was bedeutet, dass sie eine stark asymmetrische Geschwindigkeitskorrelation aufweisen in Analogie zu feldfreien (e,2e)-Stößen.

Besser scheint das Ergebnis in Abbildung 1.10(b) die experimentellen Daten zu reproduzieren. Allerdings wurde bei dieser Rechnung kein Coulombpotential für die Elektron-Elektron Wechselwirkung zu Grunde gelegt. Vielmehr wurde die Wechselwirkung mit einem auf den ersten Blick unphysikalischen Kontaktpotential modelliert. Die daher zunächst erstaunliche Übereinstimmung mit dem Experiment relativiert sich durch die Tatsache, dass die Rechnungen für eine Intensität durchgeführt wurden, die nur etwa der halben Intensität im Experiment entspricht. Bei gleicher Intensität rutschen die beiden Maxima zu deutlich höheren Impulsen und die Übereinstimmung mit dem Experiment wird schlechter.

Das Ergebnis der Lösung der eindimensionalen zeitabhängigen Schrödingergleichung für ein vollständig korreliertes Zweielektronensystem (Helium) wird in Abbil-





**Abbildung 1.10:** Verschiedene Simulationsergebnisse. (a) und (b) sind Ergebnisse einer S-Matrix Rechnung, die den Rückstreumechanismus beinhaltet, bei einer Intensität von  $6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Bei (a) wurde die Coulombwechselwirkung der Elektronen untereinander berücksichtigt. Den Ergebnissen in (b) liegt eine 3-Körper-Kontaktpotential-Wechselwirkung zu Grunde [GPKB01]. Eine eindimensionale Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung bei  $6,6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  führt zu einer Verteilung, wie sie in (c) gezeigt wird [LGE00].

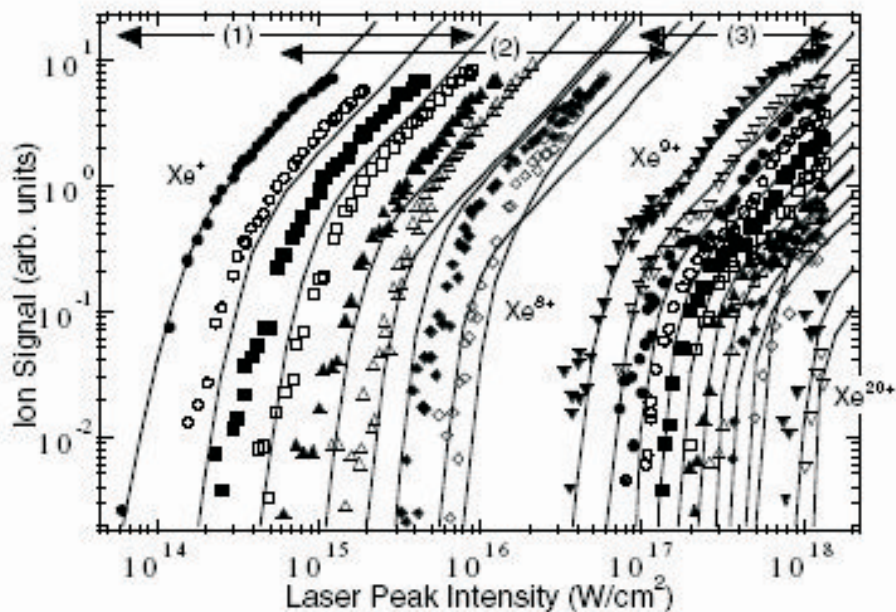
Abbildung 1.10(c) zeigt [LGE00]. Die Wechselwirkungen wurden über sogenannte „softened“ Coulombpotentiale der Form  $1/\sqrt{r^2 + a^2}$  beschrieben. Damit ist es für die Elektronen trotz nur einer Dimension möglich einander zu passieren und die dabei entstehende Singularität wird vermieden. Außerdem lässt sich die Bindungsenergie der Elektronen im ungestörten Atom mittels des Parameters  $a$  so einstellen, dass sie der des dreidimensionalen Coulombpotentials entspricht. Selbst mit dieser bereits sehr aufwendigen Rechnung gelingt es nicht die experimentellen Ergebnisse zu reproduzieren. Große Anteile in der Verteilung finden sich im I. und IV. Quadranten (die Elektronen fliegen in unterschiedliche Hemisphäre), während im Experiment dort kaum Ereignisse auftreten. Die Maxima liegen wie auch bei Abb. (a) nicht auf der Diagonale in den Quadranten II und III.

Ähnliche Rechnungen zur Argon-Doppelionisation führten ebenfalls zu keinen überzeugenden Ergebnissen [GPKB01], [GP01]. Zusammenfassend ist zu sagen, dass es zum jetzigen Zeitpunkt keine zufriedenstellende Erklärung für den Ursprung der gemessenen Elektronenimpulsverteilung gibt. Weitere Besonderheiten der Doppelionisation, wie zum Beispiel die vollständig unerwartete, Abhängigkeit von der atomaren Struktur für verschiedene Edelgase, werden in Kapitel 3.3 behandelt.

### 1.3.1 Mehrfachionisation

Die experimentellen Probleme, differentiell oder sogar mehrfachdifferentielle Wirkungsquerschnitte aufzunehmen, wachsen mit der Anzahl der zu detektierenden Teilchen. Allerdings ist es möglich totale Wirkungsquerschnitte und doppelt differentielle

Ionenimpulsverteilungen, wie in Abbildung 1.9 dargestellt zu messen. Abbildung 1.11 zeigt ein jüngst veröffentlichtes Beispiel für die Ionenzählraten für multiple Ionisation von Xenon mit 20 fs Pulsen (800 nm) bei Intensitäten bis zu  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> [YAF<sup>+</sup>04]. Bei diesen Intensitäten werden Ladungszustände bis hin zu Xe<sup>20+</sup> erzeugt. Interessant ist, dass in Abbildung 1.11 die theoretischen Kurven (ADK Theorie) für Xe<sup>+</sup> und Xe<sup>9+</sup> gut passen, während die Kurven aller dazwischenliegenden Ladungszustände entlang der Intensitätsachse verschoben werden müssen, um eine Übereinstimmung zu erzielen. Bei der Rechnung wurde lediglich sequentielle Ionisation berücksichtigt so dass die Diskrepanz zwischen dem ADK-Modell und den Messungen im jeweiligen nichtsequentiellen Bereich nicht verwunderlich ist, da es die Korrelationen zwischen den Elektronen nicht berücksichtigt. Erstaunlich ist jedoch, dass auch der jeweilige sequentielle Bereich nur bei den Ladungszuständen 1 und 9, sowie teilweise auch bei höheren gut beschrieben wird. Bei der 9-fachen Ionisation von Xenon wird, nachdem alle Elektronen der  $n = 5$  Schale durch den Laser entfernt wurden, das erste Elektron der  $4d$  Schale ionisiert. Im Allgemeinen gibt es zur Mehrfachionisation von solch komplexen Atomen kaum theoretische Arbeiten, welche die Wechselwirkung zwischen den Elektronen auf z. B. den inneren und äußeren Schalen berücksichtigt. Eine Theorie schlug einen Mechanismus vor, der die Elektronen auf der inneren  $4d$  Schale durch kohärent angetriebene  $5p$  Elektronen stark anre-

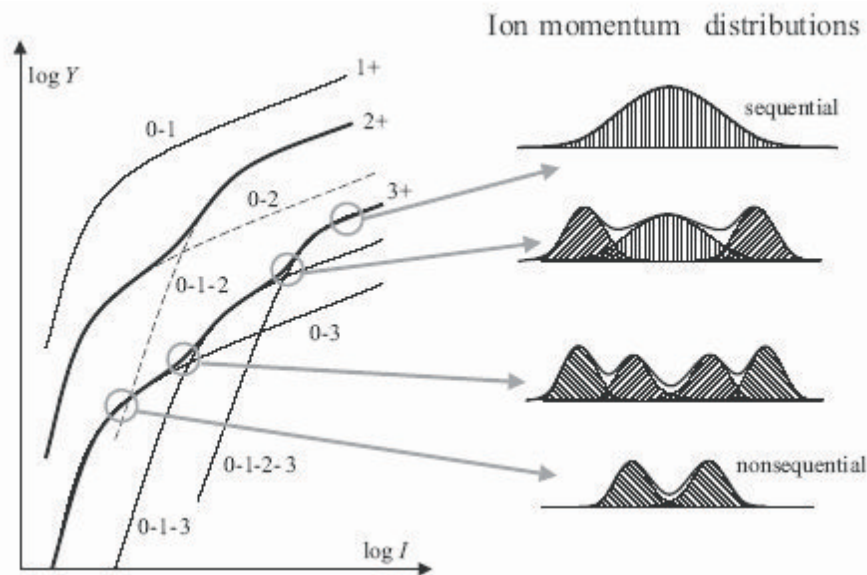


**Abbildung 1.11:** Die Mehrfachionisation von Xenon. Die durchgezogenen Linien sind die Vorhersagen der ADK-Theorie. Die Bereiche (1), (2) und (3) bezeichnen Bereiche die mit unterschiedliche Kombinationen von Titansaphirverstärkern gemessen wurden.

### 1.3. Mechanismen der Mehrfachionisation

gen kann [BR85], [SR86]. Eine andere Theorie geht im Gegensatz davon aus, dass die äußere  $5p$  Schale die innere  $4d$  Schale gegen äußere Felder abschirmt [LJW86]. Im letzteren Fall würde die effektive Laserintensität durch die Abschirmung davon abhängig sein, wie viele Elektronen schon ionisiert wurden. Wenn aber die gesamte  $5p$  Schale bereits ionisiert wurde, dürften diese Abschirmungseffekte nicht mehr auftreten. Das ist genau was auch experimentell beobachtet wird. Bei der  $\text{Xe}^{9+}$  Ionisation wird in der ansteigenden Flanke des Laserpulses die  $5p$  Schale möglicherweise vollständig ionisiert. Damit ist die Abschirmung nicht mehr vorhanden und das elektrische Feld des Lasers, welches dann zur sequentiellen Tunnelionisation führt, wird nicht mehr abgeschirmt. Deshalb stimmt möglicher Weise bei  $\text{Xe}^{9+}$  die theoretische Vorhersage mit der experimentellen Beobachtung überein.

Ein weiterer interessanter Punkt ist die Frage, ob auch Kombinationen von nicht-sequentieller und sequentieller Ionisation vorkommen. Abbildung 1.12 zeigt schematisch, wie sich das Ionenimpulsspektrum für die Dreifachionisation von reiner nicht-sequentieller Ionisation (das zweite und dritte Elektron wird durch Stoßionisation bei Rückstreuung erzeugt (0-3)) bis hin zur rein sequentiellen Ionisation (0-1-2-3) ändern sollte [FMU00]. Den Überlegungen liegen ähnliche kinematische Betrachtungen



**Abbildung 1.12:** Schematisches Diagramm der Ionenzählrate  $Y$  für Einfach-, Doppel- und Dreifachionisation in einem intensiven linear polarisierten Laserfeld als Funktion der Intensität  $I$ . Die im Rahmen des Modells erwartete qualitative Veränderung der Impulsverteilung für die dreifachgeladenen Ionen ist auf der rechten Seite zu sehen. Beiträge der verschiedenen Ionisationskanäle sind durch die verschiedenen Schraffierungen gekennzeichnet:  $////$ , nichtsequentielle Ionisation (0-3);  $\\ \\ \\$ , kombinierte sequentielle - nichtsequentielle Ionisation (0-1-3);  $|||$ , sequentielle Ionisation (0-1-2-3) [FMU00].

zu Grunde, wie sie oben für die Doppelionisation diskutiert wurden. Bis jetzt ist es allerdings nicht gelungen, die verschiedenen Ionisationskanäle in Experimenten voneinander zu trennen.

Auf weiterführende Betrachtungen und neue Messungen zur Mehrfachionisation wird in Kapitel 3.4 eingegangen.

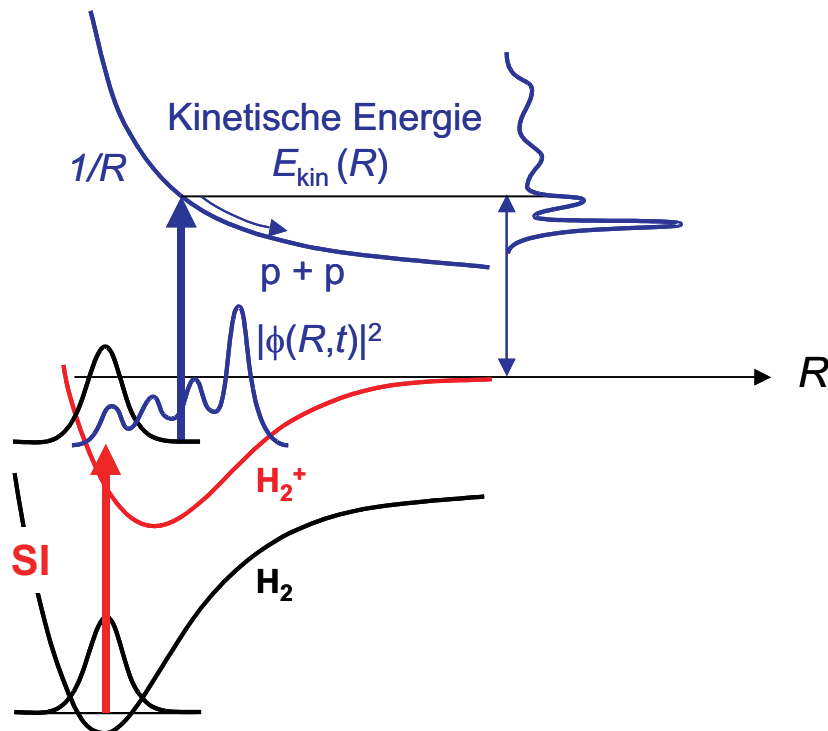
## 1.4 Wasserstoff und Deuterium im intensiven Laserfeld

Die Fragmentation und Ionisation der einfachsten Moleküle  $H_2$  und  $H_2^+$  (bzw.  $D_2$  und  $D_2^+$ ) in intensiven Laserfeldern wurde experimentell wie auch theoretisch intensiv untersucht. Im Gegensatz zu Atomen spielen bei Molekülen drei Zeitskalen eine Rolle: die schnelle Bewegung der Elektronen (Attosekunden), die Vibrationen der Kerne (Femtosekunden) und die Rotation des Moleküls (Picosekunden). Dabei ist die Vibration von besonderem Interesse, da die ihre Zeitskala in der Größenordnung der Pulsdauer von heute verfügbaren Lasern liegt.

Theoretische Arbeiten beschäftigten sich bislang hauptsächlich mit dem Molekülion ( $H_2^+$ ) und dessen Wechselwirkung mit starken Laserpulsen ( $> 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ) [YZB96], [FT03a], [FT03b], [TZL03b], [NLH<sup>+</sup>02]. Einige Eigenschaften machen es zum idealen Objekt zur Untersuchung von Wechselwirkungen von Lasern mit Molekülen. Erstens ist in  $H_2^+$  nur der elektronische Grundzustand gebunden. Alle übrigen (angeregten) Zustände sind repulsiv (s. Abb. 1.14). Zweitens sind die energetisch niedrigsten Zustände bei großen Abständen  $R$  der Kerne entartet, was in Anwesenheit eines äußeren elektrischen Feldes zu einem starken induzierten Dipolmoment führt [YZB96], [CCZB96].

Aufgrund des großen Unterschieds in den Ionisationsenergien von  $H_2$  (15,2 eV) und  $H_2^+$  (29,9 eV), ist es relativ leicht mittels eines Laserpulses ein  $H_2^+$ -Molekül zu erzeugen, ohne dass eine große Wahrscheinlichkeit besteht, es bei der selben Intensität gleich wieder zu zerstören. Die meisten Experimente benutzten daher neutrale Moleküle als Target [FSH<sup>+</sup>92], [TTT<sup>+</sup>97], [TRS99], [NLH<sup>+</sup>02]. Allerdings wird  $H_2^+$  in der Regel im selben Puls erzeugt, in dem auch die Fragmentation des  $H_2^+$ -Ions untersucht wird, so dass die beiden Prozesse nicht leicht separiert werden können [WIC97]. Deshalb gibt es ein großes Interesse, ionische Targets zu verwenden [WMS<sup>+</sup>00], [SFH00]. Eine weitere Möglichkeit die beiden Stufen voneinander zu separieren besteht darin, ein besseres Verständnis für die Zeitabhängigkeit der Fragmentationsdynamik zu entwickeln. Unter Verwendung des Prinzips der „molekularen Uhr“ wurden erste Arbeiten diesbezüglich durchgeführt, um die Fragmentation zeitaufgelöst zu untersuchen [NLH<sup>+</sup>02], [AOB<sup>+</sup>03]. Die Idee basiert auf dem Rückstreumechanismus [Cor93]

(s. Kapitel 1.2.3). Dabei wird die gemeinsame Propagation der Kern- und Elektronenwellenpakete betrachtet, welche mit den ersten Ionisationsschritt ( $\text{H}_2 \rightarrow \text{H}_2^+$ ) gestartet wird. Da die Elektronenbewegung sehr schnell gegenüber der Bewegung der Kerne ist, findet ein Franck-Condon Übergang statt. Danach ist das dabei entstehende Molekülion nicht im Gleichgewichtszustand und fängt an zu schwingen (s. Abb. 1.13). Das emittierte Elektron seinerseits wird im Laserfeld hin und her getrieben und kann mit dem Ion kollidieren (s. Kapitel 1.2.3). Während dieser Zeit schwingen die Kerne gegeneinander. Das ungefähr alle 2,7 fs (bei 800nm Wellenlänge) wiederkehrende Elektron fragt sozusagen wie ein Stroboskop die langsamere Entwicklung der Kernwellenfunktion ab, und bildet damit das „Uhrwerk“. Die Emission des zweiten Elektrons durch einen ( $e,2e$ )-Stoß führt nun zu einer Coulombexplosion des Moleküls. Damit ist es möglich die Kernwellenfunktion zum Zeitpunkt der Kollision über die  $1/R$ -Potentialkurve auf die kinetische Energie der Protonen abzubilden. Abbildung 1.13 verdeutlicht den Prozess. Allerdings gibt es auch andere Reaktionskanäle die zur Fragmentation des  $\text{H}_2^+$ -Moleküls und zu anderen repulsiven Potentialkurven führen. Deshalb ist es notwendig zu wissen, über welchen Kanal



**Abbildung 1.13:** Die Abbildung verdeutlicht die Idee der „molekularen Uhr“. Nach der Ionisation (SI) entwickelt sich die Wellenfunktion von  $\text{H}_2^+$ . Wenn das Elektron zurückkommt und das zweite auch ionisiert wird, wird über die  $1/R$ -Potentialkurve die Kernwellenfunktion auf die Verteilung der kinetischen Energie der Protonen abgebildet.

das Molekül fragmentiert ist, um wirklich Informationen über die Entwicklung der Kernwellenfunktion aus der Energieverteilung der Protonen zu gewinnen. Dies erfordert eine detaillierte und umfassende Modellierung des Rückstreumechanismus, wobei eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment erreicht wurde [TZL03b].

### 1.4.1 Fragmentationsprozesse in $\text{H}_2$ ( $\text{D}_2$ )

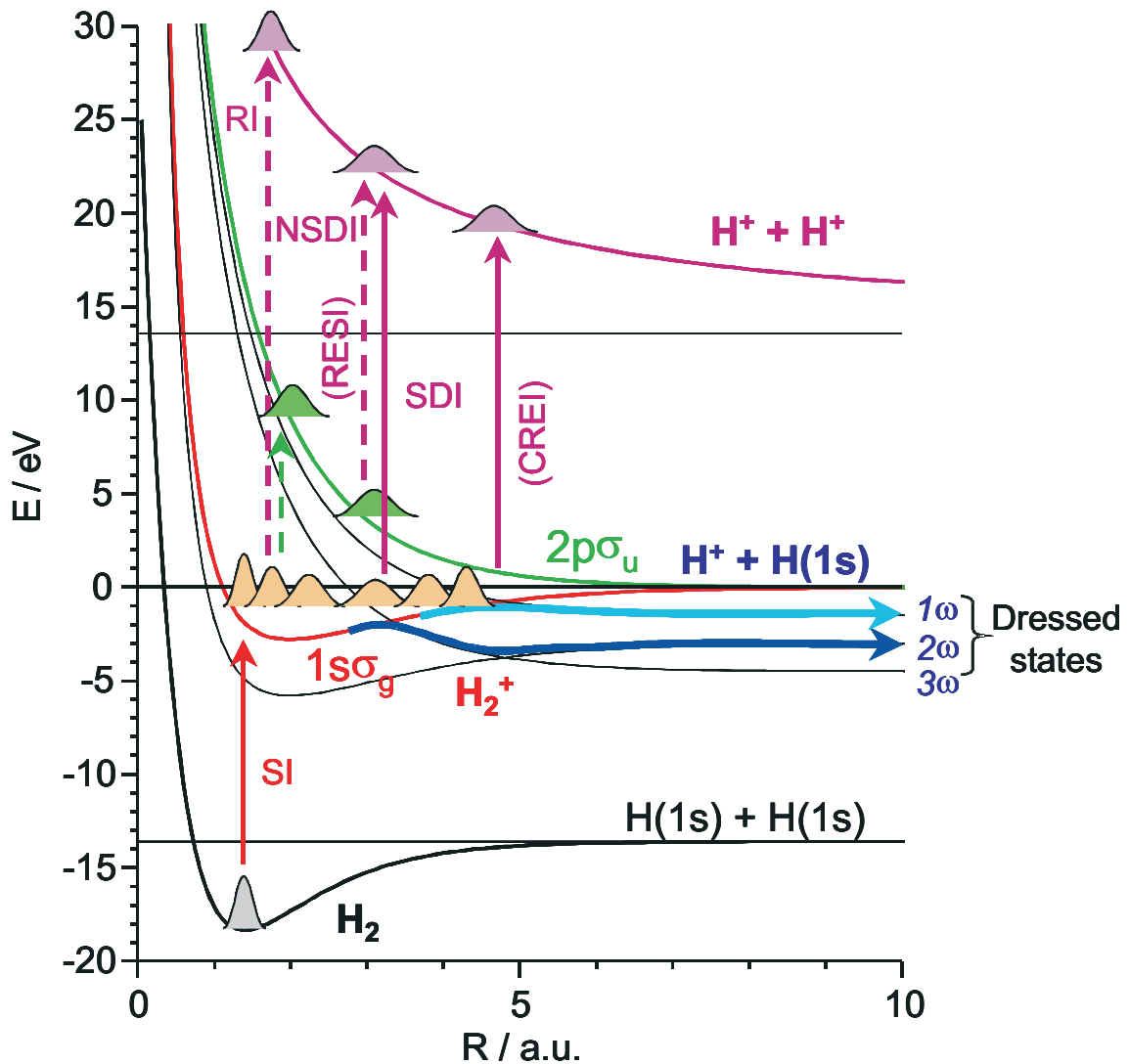
Abbildung 1.14 zeigt die bei der Fragmentation von Wasserstoff relevanten Potentialkurven in Abhängigkeit vom Abstand der beiden Kerne und deutet jene Prozesse an, die zu einer Fragmentation führen. Als nächstes sollen diese im einzelnen besprochen werden.

SI („single ionization“) bezeichnet die einfache Ionisation ohne Fragmentation (Abb. 1.14). Dabei wechselt das System vom Wasserstoffgrundzustand (schwarze Kurve) in den Grundzustand des Wasserstoffions (rote Kurve). Die ursprüngliche Kernwellenfunktion ist kein Eigenzustand der neuen Potentialkurve: Es bildet sich eine kohärente Superposition aus vielen Vibrationszuständen (im Gegensatz zu einem inkohärenten Ensemble aus Molekülionenquelle). Der Gleichgewichtszustand ist im  $\text{H}_2^+$  größer als im  $\text{H}^2$  Molekül. Deshalb entfernen sich die beiden Kerne als erste voneinander und fangen an gegeneinander zu schwingen. Die Schwingungsperiode von  $\text{H}_2^+$  liegt in der Größenordnung 10 fs. Danach gibt es die Möglichkeit, dass das Molekülion dissoziiert oder das zweite Elektron ebenfalls ionisiert wird. Sind die Intensitäten hoch genug, kann das zweite Elektron zu einem späteren Zeitpunkt unabhängig von dem ersten Elektron ionisiert werden (sequentielle Doppelionisation, SDI). Dabei wechselt das Molekülion von der Grundzustandskurve zur repulsiven ( $\propto 1/R$ )  $\text{H}^+ + \text{H}^+$ -Kurve (lila Kurve). Es findet eine Coloumbexplosion statt, wobei die Protonen abhängig vom momentanen internuklearen Abstand kinetische Energie gewinnen. Da die Ionisationswahrscheinlichkeit in den Feldspitzen am höchsten ist und damit periodisch schwankt, sollte ähnlich wie die Elektronenspektren auch die Energieverteilung der Protonen eine Struktur aufweisen (s. Kapitel 1.2.1). Der internuklearen Abstand ist aber aufgrund dessen, dass die Kernwellenfunktion eine kohärente Superposition aus vielen Vibrationszuständen ist, die auch energetisch weiter als die Elektronenenergie auseinanderliegen können, durch eine so breite Verteilung gegeben, dass sie mit der Verteilung des internuklearen Abstands eine Feldperiode später noch überlappt. Daher sind die Peaks im Spektrum durch die Kernwellenfunktion so stark verbreitert, dass durch den Überlapp keine Struktur mehr sichtbar ist [TL04].

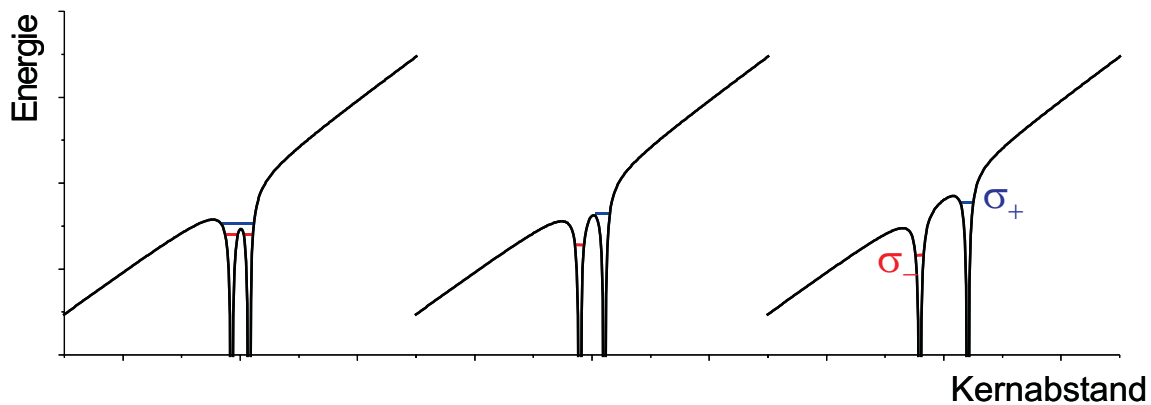
Ein anderer wichtiger Mechanismus für die Doppelionisation bei niedrigeren Intensitäten ist die Rückstreuung des Elektrons nach der Einfachionisation (NSDI - nichtsequentielle Doppelionisation). Dabei kann das zweite Elektron durch direkte

Stoßionisation (RI) herausgeschlagen werden. Die Rückstreuung geschieht innerhalb sehr kurzer Zeiten nach der Einfachionisation (von einem halben bis zu einem Laserzyklus  $\approx 2$  fs) und führt zu hohen Protonenenergien, da die Kerne einander noch sehr nahe sind.

Bei der Rekollision kann es ferner neben der direkten Stoßionisation auch zur Anregung des zweiten Elektrons kommen. Da alle angeregten Zustände repulsiv sind,



**Abbildung 1.14:** Die relevanten Potentialkurven von  $H_2^+$  in Abhängigkeit vom Abstand der beiden Kerne. Ebenfalls eingezeichnet ist der Grundzustand von  $H_2$  und die Potentialkurve für die Coloumbexplosion  $H^+ + H^+$ . Die einzelnen Abkürzungen bezeichnen verschiedene Ionisationsprozesse: SI, Einfachionisation; NSDI, nichtsequentielle Doppelionisation; RI Recollision-Ionization; RESI, Recollision-Excitation and Subsequent field Ionization; SDI, sequentielle Doppelionisation; CREI, Charge-Resonant-Enhanced-Ionization.



**Abbildung 1.15:** Die Abbildung verdeutlicht das Prinzip der CREI. Bei einem bestimmten Abstand kann das Elektron über die mittlere Barriere entkommen.

wird das Molekülion dissoziieren  $H_2^+ \rightarrow H^+ + H$ , oder aber im weiteren Verlauf feldionisieren (RESI - Recollision-Excitation plus Subsequent field Ionization [JRF<sup>+</sup>04]). Jüngste theoretische Untersuchungen zeigen eine Dominanz der RESI gegenüber der direkten Stoßionisation [TZL03a], [JFZ<sup>+</sup>04] (s. Kapitel 3.3).

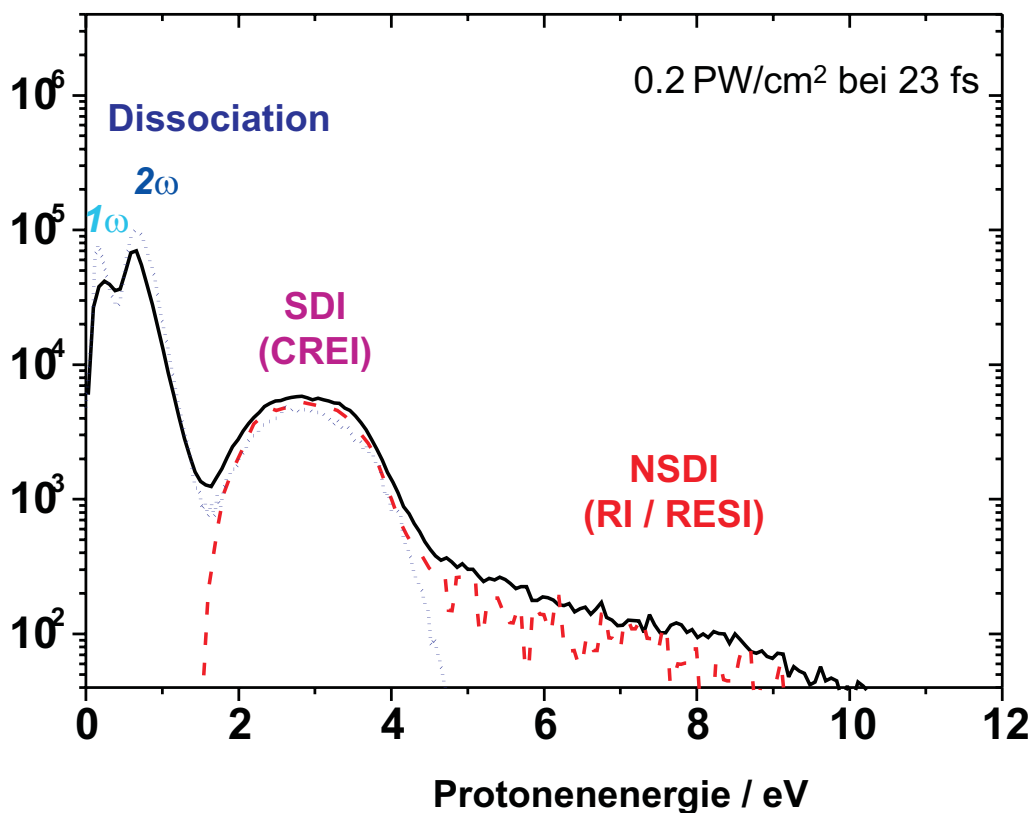
Es ist ebenso möglich, dass, durch einen Fokussierungseffekt der Kerne [BIC96], [MK98], die Kollision des Elektrons mit dem Molekülion nicht bei der ersten Rückkehr sondern ein oder mehrere Laserzyklen später stattfindet. Dies führt zu anderen Energien der Protonen, da sich die Kerne weiter voneinander weg bewegen, und somit zu mehreren Peaks im Energiespektrum welche überlagert eine breite Verteilung ergeben [TZL03a], [NLR<sup>+</sup>03], [LLD<sup>+</sup>03]. Ein Spezialfall für die SDI ist in Abbildung 1.14 mit CREI (Charge-Resonant-Enhanced-Ionization) bezeichnet [ZB93], [PM96]. In einem bestimmten Bereich internuklearer Abstände ist die Wahrscheinlichkeit für die Feldionisation des Molekülions besonders hoch. Anhand von Abbildung 1.15 soll dies illustriert werden. Bei großen Abständen zwischen den Kernen sind der Grundzustand  $1s\sigma_g$  und der erste angeregte Zustand  $2p\sigma_u$  entartet. Das heißt, sie wechselwirken über ein externes Laserfeld sehr stark miteinander und mischen zu den neuen Zuständen  $\sigma_+$  und  $\sigma_-$ , wobei bei angelegtem Feld die Potentialkurve für  $\sigma_+$  mit zunehmendem Kernabstand ansteigt wogegen die Potentialkurve für  $\sigma_-$  abfällt. Die sich ergebende Energieaufspaltung ist proportional zu  $R$ . Dabei ist das Elektron je nach Zustand bei dem einen oder anderen Proton lokalisiert. Bei kleinen Abständen der Kerne zueinander ist bei überlagertem Laserfeld die Ionisationsbarriere noch zu hoch, und somit die Tunnelwahrscheinlichkeit für das Elektron unterdrückt. Wird der Abstand größer bildet sich eine neue Tunnelbarriere zwischen den Kernen. Gleichzeitig wird das  $\sigma_+$  Niveau angehoben. Damit ist es möglich, dass das Elektron im  $\sigma_+$  Zustand über die mittlere Barriere entkommen kann (s. Abb. 1.15 Mitte). Folglich ist die Wahrscheinlichkeit bei diesen Abständen zu ionisieren sehr viel höher.



her. Dieser Prozess wird „enhanced ionization“ (EI) genannt. Ein anderer Umstand erhöht die Ionisationswahrscheinlichkeit noch: Das Wechselfeld des Lasers treibt die Elektronenwolke immer von Kern zu Kern. Dabei schwingt die Wellenfunktion in Gegenphase mit dem externen Feld, was dazu führt, dass das Elektron sich bevorzugt im  $\sigma_+$  Zustand befindet [ZB93], welcher mit hoher Wahrscheinlichkeit ionisiert wird. Insgesamt wird dieser Mechanismus deshalb Charge-Resonance-Enhanced-Ionization (CREI) genannt.

Da der Übergang zur repulsiven  $H^+ + H^+$  Kurve bei CREI in einem bestimmten Bereich des Kernabstands von 3 – 8 a.u. erfolgt, ist den Protonen, die über diesen Kanal entstehen, ein bestimmter Energiebereich zugeordnet, der im Energiespektrum sichtbar ist (s. Abb. 1.16).

Nun findet CREI bei internuklearen Abständen statt, die im Grundzustand von  $H_2^+$  nicht erreicht werden. Es muss also vorher einen Prozess geben, der zur Dissoziation ( $H^+ + H(1s)$ ) führt. Zum einen führt die oben angesprochen Anregung durch Elektronenstoß bei Rückstreuung zur Dissoziation, andererseits ist es auch möglich,



**Abbildung 1.16:** Das Protonenenergiespektrum für die Ionisation von  $H_2$  bei einer Intensität von  $0,2 \text{ PW/cm}^2$  und 23 fs. Die Anteile der einzelnen Ionisationskanäle (s. Text) sind eingezeichnet.

dass das Ion zusätzliche Photonen absorbiert. Um zu verstehen wie es dabei zur Dissoziation kommt, erfolgen die kommen Betrachtungen im so genannten „dressed state“- Bild. Dabei werden die Potentialkurven um die Photonenenergie verschoben, so als ob das Molekülion ein oder mehrere Photonen absorbiert hätte. Die dabei entstehenden neuen Zustände müssen die selbe Parität haben wie die des ungestörten Systems. Deshalb kann der Grundzustand  $1s\sigma_g$  nur an eine gerade Anzahl von Photonen koppeln, während der erste angeregte Zustand  $2p\sigma_u$  nur an eine ungerade Anzahl koppelt. In Abbildung 1.14 sind diese Zustände als schwarze dünne Linien eingezeichnet.  $1\omega - 3\omega$  kennzeichnet um das wie vielfache der Photonenenergie die Potentialkurve verschoben wurde. Die  $1\omega$  und  $2\omega$  Linien sind die verschobenen Potentialkurven des ersten angeregten Zustands. Die  $2\omega$  Linie ist der um 2 Photonen verschobene Grundzustand. Dabei kreuzen sich die Potentialkurven. Ein System, das diesen Potentialkurven adiabatisch folgt, kann diese Kreuzungen nicht passieren, sondern muss die Potentialkurve wechseln (avoided crossing; s. dunkel- und hellblauer Pfeil in Abb. 1.14).

Bei ausreichend hohen Intensitäten ist es möglich, dass das Ion drei Photonen absorbiert und damit den ersten angeregten Zustand effektiv um 3 Photonen nach unten verschiebt ( $3\omega$ - Kurve). Dabei entsteht eine Kreuzung zwischen dem ungestörten Grundzustand und dem  $3\omega$ - Zustand. Damit hat das Molekülion nun die Möglichkeit zu dissoziieren, wobei es auf die  $3\omega$ - Kurve wechselt (3 Photonen absorbiert; in Abb. 1.14 der dunkelblaue Pfeil). Allerdings kreuzt dieser Zustand wiederum den um  $2\omega$  verschobenen Grundzustand, so dass das Ion unter Emission eines Photons auf die  $2\omega$ - Potentialkurve wechselt. Die Fragmente  $H^+$  und  $H(1s)$  haben damit eine Energie von  $2\omega$ , die sich nach Impulserhaltung gleichmäßig auf sie aufteilt (Elektronenmasse ist zu vernachlässigen). Der dabei entstehende Peak im Protonenenergiespektrum ist in Abbildung 1.16 zu sehen.

Eine weitere Kreuzung gibt es zwischen dem Grundzustand und dem  $1\omega$ - Zustand. Allerdings ist dieser Kanal (hellblaue Kurve) für Vibrationszustände  $\nu < 5$  energetisch verboten, da das Energieniveau bei großen Abständen höher liegt als der Anfangszustand. Das bedeutet im Endeffekt, dass die Dissoziation von niedrigen Vibrationszuständen durch die Absorption von nur einem Photon nicht möglich ist. Für höhere Vibrationszustände allerdings ist ein Photon ausreichend und führt zum  $1\omega$ - Peak im Spektrum.

# Kapitel 2

## Erzeugung intensiver kurzer Pulse

Dieses Kapitel beschreibt den Aufbau des für die Messungen verwendeten Titansaphirlasersystems und die Methode, welche zur weiteren Verkürzung der ursprünglich erzeugten Pulse entwickelt wurde. Das Lasersystem (Femtopower Compact pro, Femtolasers) selbst emittiert Pulse mit einer Pulsdauer von 23-25 fs bei einer Zentralwellenlänge von 795 nm mit einer Repetitionsrate von 3 kHz. Die Pulsenergie kann bis zu 400  $\mu\text{J}$  betragen. Damit lassen sich bei einem Fokusbereich von 7  $\mu\text{m}$  und mit einem perfekten Gaußstrahl theoretisch Intensitäten von bis zu  $4 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  erzeugen. In der Realität wurde aus den mit Hilfe des Rektionsmikroskops beobachteten Spektren eine maximale Intensität von  $2 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  ermittelt (s. Kapitel 2.5). In Kapitel 2.3 wird die Verkürzung der intensiven Pulse unter Verwendung der Selbstphasenmodulation beschrieben. Es wurden Rekordpulslängen von lediglich  $\approx 5$  fs erzielt, weniger als ein optischer Zyklus (2,5 fs) länger als die kürzesten intensiven Pulse (3,4 fs) bei dieser Wellenlänge, von denen überhaupt je berichtet wurde [YZS<sup>+</sup>03]. Schon mit 6-7 fs Pulsen war ein stabiler Messbetrieb möglich.

Der erste Teil ist einer kleinen Einführung in die Beschreibung kurzer Pulse gewidmet [Mor02].

### 2.1 Die Beschreibung kurzer Laserpulse

Ein Laserpuls lässt sich in eine Trägerwelle der Frequenz  $\omega_0$  und die Einhüllende  $A(z, t)$  zerlegen:

$$F(z, t) = \sqrt{\frac{1}{c\epsilon_0 n^2 A_{eff}}} \text{Re} \{ A(z, t) e^{i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)} \}, \quad (2.1)$$

mit  $\epsilon_0$  der Elektrizitätszahl im Vakuum und  $c$  der Lichtgeschwindigkeit. Dabei wurde die Gleichung für den Verlauf der elektrischen Feldstärke  $F(z, t)$  mittels der effektiven Strahlfläche  $A_{eff}$  und dem Brechungsindex  $n$  so normiert, dass  $|A|^2$  den

zeitlichen Verlauf der Leistungseinhüllenden wiedergibt. Die Propagation eines solchen Pulses in einem linearen Medium entlang der  $z$ -Koordinate folgt der Gleichung

$$F(z, t) = \int \hat{F}(0, \omega) e^{i(\omega t - \phi(z, \omega))} d\omega, \quad (2.2)$$

wobei  $\hat{F}(0, \omega)$  das fouriertransformierte elektrische Feld bei  $z = 0$  darstellt. Die Phase  $\phi(z, \omega)$  kann um die Zentralwellenlänge  $\omega_0$  entwickelt werden:

$$\begin{aligned} \phi(z, \omega) &= \phi_0 + \left. \frac{\partial \phi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} \Delta\omega + \sum_{\nu=2}^{\infty} \frac{(\Delta\omega)^\nu}{\nu!} \left. \frac{\partial^\nu \phi}{\partial \omega^\nu} \right|_{\omega_0} \\ &= \phi_0 + D_1 \Delta\omega + \sum_{\nu=2}^{\infty} D_\nu \frac{(\Delta\omega)^\nu}{\nu!} = \phi_0 + k(\omega)z, \end{aligned} \quad (2.3)$$

wobei  $\Delta\omega = \omega_0 - \omega$  ist. Aus dieser Entwicklung werden die folgenden Koeffizienten extrahiert: Die Gruppenverzögerung („group delay“, mit der Einheit [fs])

$$GD(\omega) = D_1 = \frac{\partial \phi}{\partial \omega} = \frac{z}{v_g} = \frac{z}{c} n_g, \quad (2.4)$$

mit der Gruppengeschwindigkeit  $v_g$ , dem Gruppenindex  $n_g = n - \lambda \frac{dn}{d\lambda} = n + \omega \frac{dn}{d\omega}$  und der Vakuumwellenlänge  $\lambda$ ; die Gruppendispersion („group delay dispersion“, mit der Einheit [fs<sup>2</sup>])

$$GDD(\omega) = D_2 = \frac{\partial^2 \phi}{\partial \omega^2} = \frac{\partial D_1}{\partial \omega} = z \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2}; \quad (2.5)$$

und die Dispersion dritter Ordnung („third order dispersion“, mit der Einheit [fs<sup>3</sup>])

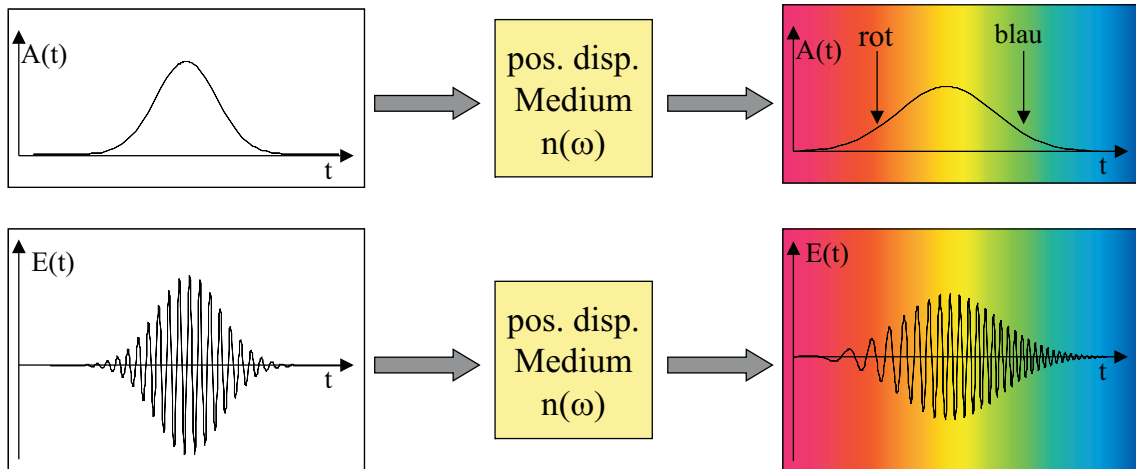
$$TOD(\omega) = D_3 = \frac{\partial^3 \phi}{\partial \omega^3} = \frac{\partial D_2}{\partial \omega} = -z \frac{\lambda^4}{4\pi^2 c^3} \left( 3 \frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2} + \lambda \frac{\partial^3 n}{\partial \lambda^3} \right). \quad (2.6)$$

Analog kann die Ausbreitungskonstante  $k(\omega) = n(\omega)\omega/c$  um die Zentralfrequenz entwickelt werden:

$$\begin{aligned} k(\omega) &= k_0(\omega) + k_1|_{\omega_0} \Delta\omega + \frac{k_2|_{\omega_0}}{2} \Delta\omega^2 + \frac{k_3|_{\omega_0}}{6} \Delta\omega^3 + O(\Delta\omega^4) \\ k_1|_{\omega_0} &= GD/z \\ k_2|_{\omega_0} &= GDD/z \\ k_3|_{\omega_0} &= TOD/z \end{aligned} \quad (2.7)$$

Die entsprechenden Koeffizienten  $k_i = D_i/z$  charakterisieren das Propagationsmedium und sind unabhängig von der Ausbreitungsordinate  $z$ . Ist nur  $k_1 \neq 0$  bewegt sich die Trägerwelle mit der Frequenz  $\omega_0$  im Propagationsmedium mit einer anderen

## 2.1. Die Beschreibung kurzer Laserpulse



**Abbildung 2.1:** Die Abbildung zeigt, wie die Propagation eines Pulses durch ein Medium mit positiver Dispersion das elektrische Feld und die Einhüllende verändert.

Geschwindigkeit als die Einhüllende (Gruppengeschwindigkeit). In Folge dessen verschiebt sich während der Propagation die Trägerwelle gegenüber der Einhüllenden, so dass sich die sogenannte Träger-Einhüllenden-Phase während der Ausbreitung in einem Medium ändert. Die Form der Einhüllenden wird aber von diesem Term der Entwicklung nicht verändert. Erst wenn  $k_2$  im dritten Term ungleich Null ist, ändert sich der zeitliche Verlauf des Pulses.

$$\begin{aligned}
 \hat{A}(z, \omega) &= \hat{A}(0, \omega) e^{i \frac{k_2}{2} \Delta \omega^2 z} \\
 \frac{\partial \hat{A}(z, \omega)}{\partial z} &= i \frac{k_2}{2} \Delta \omega^2 \hat{A}(z, \omega) \\
 \frac{\partial A(z, t)}{\partial z} &= -i \frac{k_2}{2} \frac{\partial^2 A(z, t)}{\partial t^2}.
 \end{aligned} \tag{2.8}$$

Dabei bezeichnet  $\hat{A}(z, \omega)$  die Fouriertransformierte der Einhüllenden. Die Propagationsgleichung 2.8 ist äquivalent zur Schrödingergleichung eines nichtrelativistischen freien Teilchens und beschreibt das Zerlaufen eines Pulses (Wellenpaketes). Die Abbildung 2.1 stellt die Auswirkung für die Propagation durch ein Medium mit  $k_2 > 0$  dar<sup>1</sup>. Die Einhüllende verbreitert sich und die Frequenz der Trägerwelle ändert sich im Puls. In der Front des Pulses liegen die zu  $\omega_0$  rotverschobenen Frequenzen und im Rücken die blauverschobenen. Der Puls hat einen sogenannten „Upchirp“. Die Analyse der Propagation eines gaußförmigen Pulses durch ein Medium führt zu folgender

<sup>1</sup>Bei  $k_2 > 0$  wird von normaler Dispersion gesprochen. Für die Wellenlänge von 800 nm haben alle Gläser normale Dispersion. Bei  $k_2 < 0$  wird von anormaler Dispersion gesprochen.

Gleichung für die Pulsdauer [Mor02]:

$$\tau_{FWHM}(z) = \tau_{0,FWHM} \sqrt{1 + \frac{16 \ln(2)^2 k_2^2 z^2}{\tau_{0,FWHM}^4}}. \quad (2.9)$$

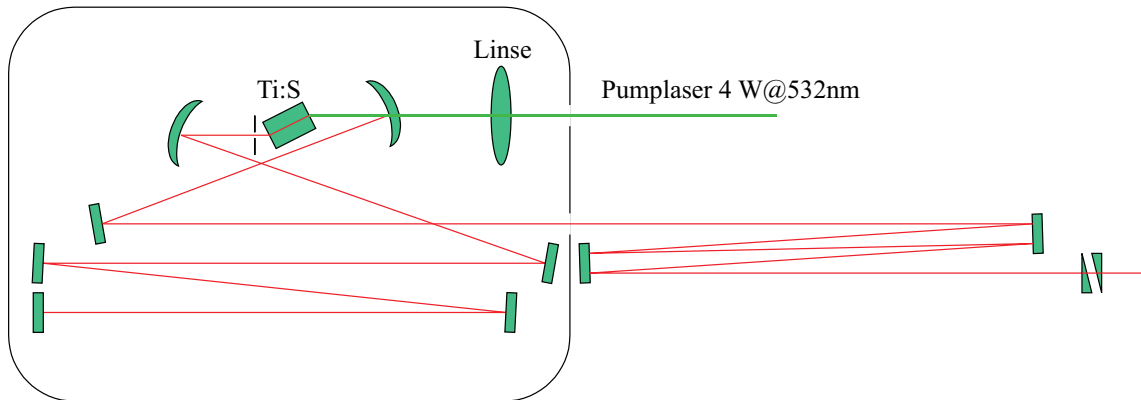
Dabei bezeichnet  $\tau_{0,FWHM}$  die volle Halbwertbreite des Anfangspuls ohne „Chirp“<sup>2</sup> und  $\tau_{FWHM}(z)$  die volle Halbwertsbreite des Pulses nach einer Strecke  $z$  im dispersiven Medium. Wie stark sich die Dispersion des Mediums auf die Pulsdauer auswirkt, hängt von der Pulsdauer des ungechirpten Pulses ab ( $GDD$  und höhere Terme gleich Null). Die Ursache liegt in der Breite des Spektrums, welches nötig ist um einen kurzen Puls zu bilden. Je kürzer ein Puls ist desto breiter muss das Spektrum sein. Für einen Gaußpuls zu Beispiel gilt

$$\Delta\nu\tau_{FWHM} \geq c_B \text{ mit } c_B = 0,441, \quad (2.10)$$

wobei  $\Delta\nu$  die volle Halbwertsbreite des Spektrums bezeichnet. Die Koeffizienten  $c_B$  für andere Pulsformen sind in [DR96] Seite 10 zu finden<sup>3</sup>. Bei breiten Spektren bilden sich bei der Propagation durch ein Medium aufgrund des unterschiedlichen Brechungsindex für verschiedene Frequenzen große Gangunterschiede zwischen den im Frequenzraum weit auseinander liegenden Frequenzkomponenten. Bei großen Gangunterschieden wird auch der jeweils dritte Term in den Gleichungen 2.3 und 2.8, also die Dispersion dritter Ordnung  $TOD$ , wichtig. Bei schmaleren Spektren und damit längeren Pulsen spielen diese Terme und Terme höherer Ordnung im Allgemeinen keine so große Rolle. Dies soll anhand eines Beispiels verdeutlicht werden.

Ein für Linsen, Spiegel etc. sehr gebräuchliches Glas (BK7) hat bei einer Wellenlänge von 800 nm einen Dispersionskoeffizienten von  $k_2 = 44,77 \text{ fs}^2/\text{mm}$ . Ein 25 fs fourierlimitierter Gaußpuls wird durch die Propagation durch 1 mm dieses Materials auf 25,5 fs verlängert. Ein 10 fs fourierlimitierter Gaußpuls verlängert sich schon auf 16 fs, während ein 6 fs Puls auf 21,5 fs verbreitert wird. Dabei wurde die Dispersion höherer Ordnung vernachlässigt.

Die Terme höherer Ordnung führen zu noch komplexeren Auswirkungen auf die Einhüllende und den Frequenzgang im Puls. Diese werden in [DR96] und [Kel96] ausführlicher diskutiert.



**Abbildung 2.2:** Die Abbildung zeigt den schematischen Aufbau des Titansaphirlasersozillators. Alle Spiegel sind als dispersive Elemente ausgelegt (s. Text und Kapitel 2.3.4).

## 2.2 Das Lasersystem

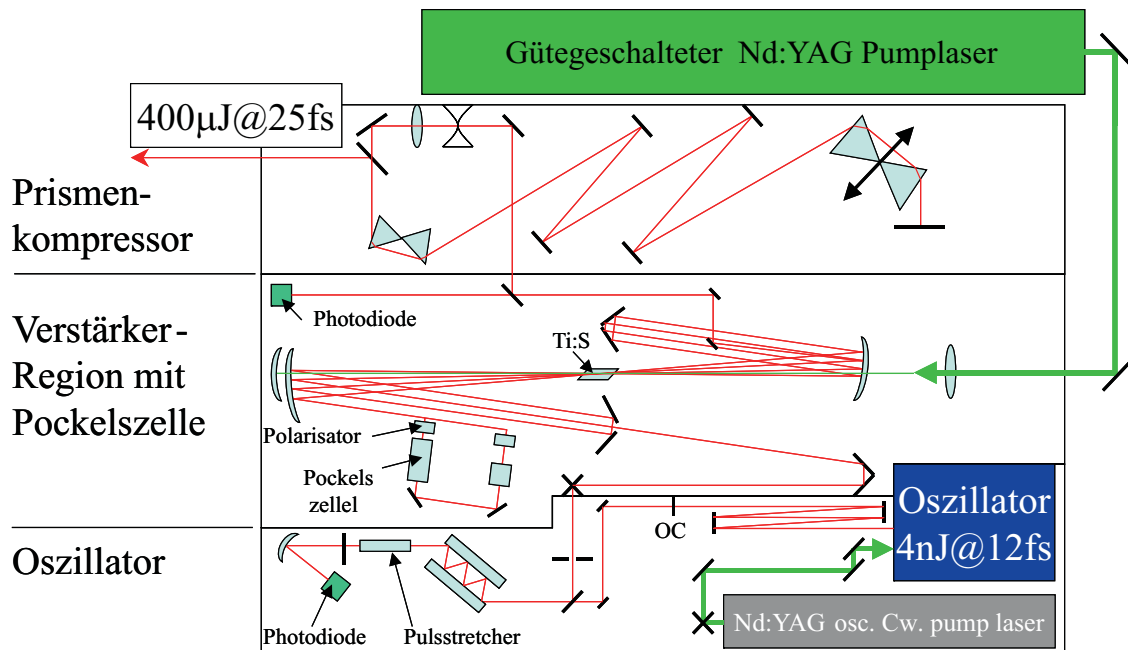
Das Lasersystem, mit dem alle im Kapitel 3 vorgestellten Spektren gemessen wurden, ist ein „Femtopower pro“ der Firma Femtolasers. Es erzeugt mit einer Repetitionsrate von 3 kHz 25 fs-Pulse (FWHM) mit einer Energie von bis zu  $400 \mu\text{J}$  bei einer Zentralwellenlänge von 795 nm.

Die Pulse werden durch einen breitbandigen ( $\approx 120 \text{ nm}$ , Zentralwellenlänge 795 nm) Titansaphirlasersozillator erzeugt [SLS<sup>+</sup>95] (s. Abb. 2.2). Bei diesem Oszillator wird die Dispersion ausschließlich durch dispersive Spiegel kontrolliert (s. Kapitel 2.3.4). Durch den Verzicht auf Prismen als dispersive Elemente ist der Oszillator einfach zu handhaben und sehr stabil im Betrieb. Diese mit der Energie von 4 nJ emittierten Pulse werden mittels „Chirped Pulse Amplification“ (CPA) verstärkt [SM85]. Dabei werden die Pulse als erstes durch ein hoch dispersives Element (im vorliegenden Fall 10 cm SF57 Glas) auf 6-7 ps verlängert. Durch die Verlängerung der Pulse sinkt die Spitzenintensität im Puls. Bei der anschließenden Verstärkung wird deshalb im Vergleich zum ungechirpt verstärkten Puls erst bei einer um den Faktor 100-1000 mal höheren Pulsenergie die Zerstörschwelle des Verstärkermediums (Titansaphirkristall) erreicht. Die gechirpten Pulse passieren neun Mal einen von einem 3 kHz Nd:YAG Laser (5-6 mJ Pulsenergie, Pulsdauer  $< 160 \text{ ns}$ , Corona von Coherent) gepumpten Titansaphirkristall. Dabei erreichen sie Pulsenergien von bis zu  $500 \mu\text{J}$  und das Spektrum schrumpft auf ungefähr 70 nm. Ein Prismenkompressor aus SF10 Prismen wird verwendet, um die Pulse wieder auf ihr Fourierlimit zu komprimieren. Die

---

<sup>2</sup>Da es im Deutschen kein geeignetes Wort für „Chirp“ gibt, wird im Folgenden der englische Ausdruck, z. T. eingedeutscht, verwendet.

<sup>3</sup>Die Pulse von Femtosekundenoszillatoren haben meist sech-Form, die Form des fundamentalen Solitons.



**Abbildung 2.3:** Die Abbildung zeigt den Gesamtaufbau des Verstärkersystems mit allen wichtigen optischen Elementen.

Wellenlängenakzeptanz dieses Kompressors beschränkt das Spektrum zusätzlich auf 40 nm. Da die durch den SF57 Glasblock und durch alle anderen optischen Elemente eingeführte Dispersion sehr hoch ist, spielt trotz des relativ schmalen Spektrums nicht nur die zweite Ordnung in Gleichung 2.8 eine Rolle sondern auch die dritte Ordnung.

Die durch einen Prismenkompressors eingeführte Dispersion zweiter und dritter Ordnung ist nicht unabhängig voneinander. Daher wurde durch sogenannte TOD-Spiegel (Third Order Dispersion) schon vor der Verstärkung die Dispersion dritter Ordnung vorkompensiert, so dass nach Durchlaufen des gesamten Verstärkers und Prismenkompressors die Koeffizienten  $GDD$  und  $TOD$  in der Entwicklung 2.3 der Phase des Pulses sehr klein sind. Durch die Verluste im Prismenkompressor beträgt die Pulsenergie der 25 fs langen, fourierlimitierten Pulse am Ende nur noch  $400 \mu\text{J}$ .

Abbildung 2.3 zeigt den Gesamtaufbau des Verstärkersystems. Die Pulseselektion, die aus dem Pulszug des Oszillators mit einer Repetitionsrate von 75 MHz einen Pulszug mit der Wiederholfrequenz von 3 kHz erzeugt, wird durch eine Pockelszelle mit anschließender Polarisationsoptik realisiert. Da das Verfahren im weiteren Verlauf dieser Arbeit nicht wichtig sind, wird für die Details auf die Anleitung verwiesen [Fem01].



## 2.3 Die Erzeugung ultra-kurzer intensiver Laserpulse

Wie schon in Kapitel 2.2 erwähnt wurde, sind die vom Verstärkersystem emittierten 25 fs Pulse fourierlimitiert. Diese Pulse haben innerhalb Ihrer vollen Halbwertsbreite etwa 10 optische Zyklen. Um noch kürzere Pulse zu erzeugen, ist es nach Gleichung 2.10 daher notwendig das Pulsspektrum zu verbreitern. Dazu wird der physikalische Prozess der sogenannten Selbstphasenmodulation benutzt.

### 2.3.1 Selbstphasenmodulation

Bei der Selbstphasenmodulation wird die Nichtlinearität des Brechungsindex bei hohen Intensitäten ausgenutzt:

$$n(\lambda, I) = n_0(\lambda) + n_2(I). \quad (2.11)$$

Bei genügend hohen Intensitäten ändert sich der Brechungsindex signifikant mit der Intensität<sup>4</sup>. Diese Änderung ist elektronischer Natur, so dass sie auch auf Femtosekundenzeitskalen als instantan angesehen werden kann. Ein Puls (auf die Normierung wurde verzichtet),

$$F(z, t) = A(z, t)e^{i(\omega_0 t - k_0(\omega_0)z)}, \quad (2.12)$$

propagiert mit der Wellenzahl  $k_0 = \frac{\omega_0}{c}n$  durch ein Medium. Wenn die Intensität hoch genug ist, wird nach Gleichung 2.11 der intensitätsabhängige Term wichtig

$$k(I(t)) = \frac{\omega_0}{c}(n_0 + n_2 I(t)), \quad (2.13)$$

so dass sich die Pulsgleichung ändert:

$$F(z, t) = A(z, t)e^{i(\omega_0 t - k_0(\omega_0)z - \frac{\omega_0}{c}n_2 I(t)z)}. \quad (2.14)$$

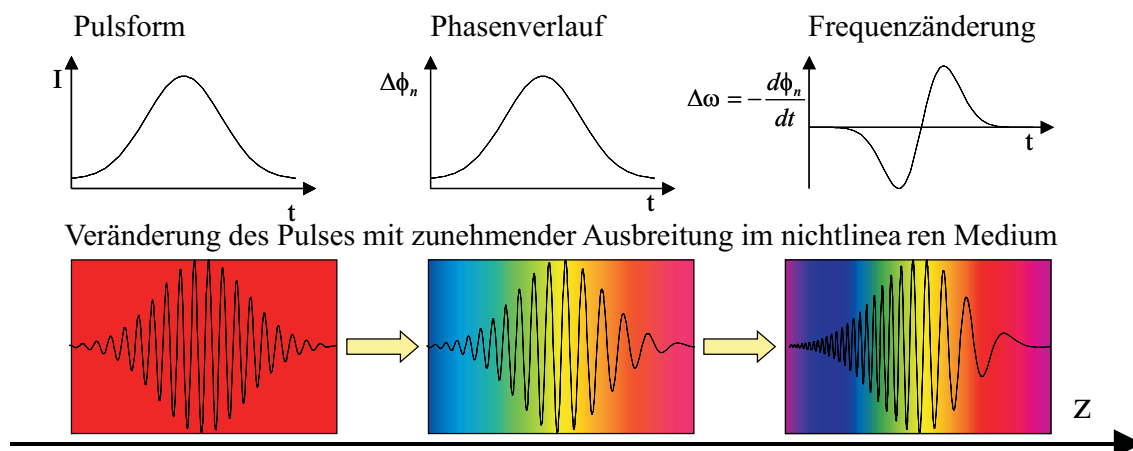
Der Puls erfährt also eine nichtlineare Phase

$$\phi_n(t, z) = \frac{\omega_0}{c}n_2 I(t)z. \quad (2.15)$$

Die in Kapitel 2.1 beschriebene Abhängigkeit des Brechungsindex  $n_0$  von der Wellenlänge bzw. Frequenz verbirgt sich in der zeitlichen und räumlichen Änderung der Einhüllenden  $A(z, t)$ .

---

<sup>4</sup>Dieser Effekt führt unter anderem auch zur Selbstfokussierung von intensiven Pulsen in optischen Medien (Kerrlinse).



**Abbildung 2.4:** Die Abbildung verdeutlicht die Auswirkung der nichtlinearen Phase auf einen Gaußpuls (s. Text).

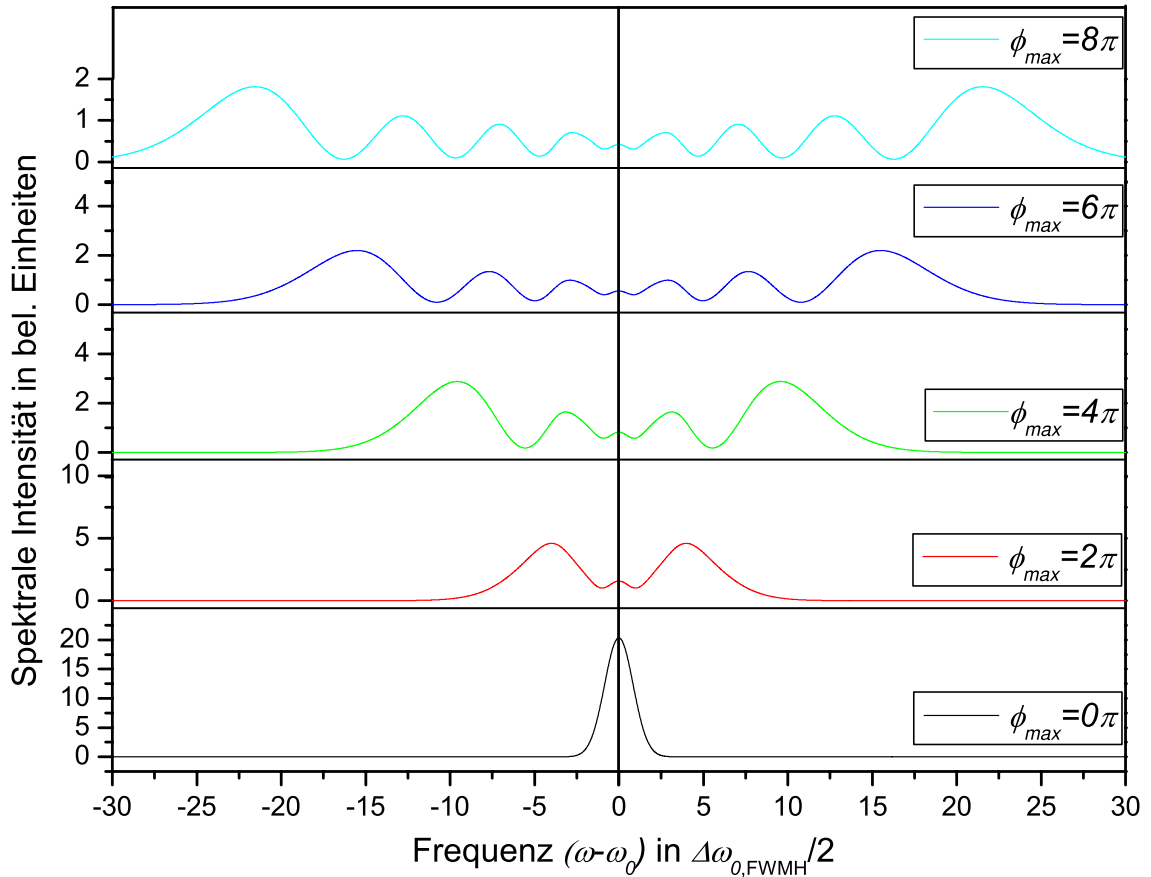
Für nahezu alle Materialien gilt  $n_2 > 0$ , weshalb im Maximum des Pulses der momentane Brechungsindex am höchsten ist. Der Verlauf der durch die Propagation erzeugten nichtlinearen Phase entspricht dem Intensitätsverlauf des Pulses. Die Änderung der Frequenz ist gerade die Ableitung der Phase nach der Zeit

$$\Delta\omega = -\frac{d\phi_n}{dt}. \quad (2.16)$$

Abbildung 2.4 veranschaulicht den zeitlichen Verlauf der Phase und die Änderung der Frequenz für einen Gaußpuls. In der Front des Pulses wird die Frequenz ( $\omega$ ) der Trägerwelle erniedrigt, während sie im Rücken des Pulses erhöht wird. Der dabei entscheidende Punkt ist, dass sich bei diesem Prozess die Pulsform nicht ändert<sup>5</sup>. Der Puls ist also aufgrund der induzierten Phase nicht mehr fourierlimitiert und behält seine Pulsform. Daher muss das Spektrum breiter werden. Eine wesentlich anschaulichere Erklärung ist, dass sich die Trägerwelle in der Pulsmitte wegen der hohen Intensität und dem damit verbundenen hohen Brechungsindex langsamer bewegt als in den Flanken. Die Front des Pulses bewegt sich also von der Pulsmitte weg, so dass die Wellenzüge „auseinander gezogen“ werden und sich die Frequenz rot verschiebt. Der Pulsrücken läuft auf die Mitte auf. Die Wellenzüge werden gestaucht und damit die Frequenzen im Rücken blauverschoben. Der untere Teil der Abbildung 2.4 verdeutlicht die Veränderung im Puls bei der Propagation entlang der  $z$ -Koordinate.

In Abbildung 2.5 werden die Ergebnisse einer Rechnung zur Selbstphasenmodulation gezeigt. Mit zunehmender nichtlinearer Phase nimmt die Breite des Spektrums

<sup>5</sup>Die Dispersion des optischen Mediums wird an dieser Stelle vernachlässigt.



**Abbildung 2.5:** Die Abbildung zeigt, wie sich theoretisch das Spektrum eines Gaußpulses ändert, wenn der Puls eine nichtlineare Phase aufnimmt.  $\phi_{max}$  bezeichnet dabei die akkumulierte Phase im Pulsmaximum. Als Einheit für die Frequenz wurde die halbe Halbwertsbreite des Ausgangspektrum gewählt, wobei die ursprüngliche Trägerfrequenz  $\omega_0$  abgezogen ist.

zu. Typisch für die Selbstphasenmodulation ist, dass die entstehenden Spektren moduliert sind. Diese Modulation führt zu Vor- und Nachpulsen in der Zeitdomäne, welche damit ein intrinsisches Problem der Selbstphasenmodulation sind.

### 2.3.2 Faserleitung

Um das Spektrum über den soeben beschriebenen Mechanismus zu verbreitern, müssen die 25 fs-Pulse in ein nichtlineares Medium fokussiert werden. Da die nichtlinearen Brechungsindizes der meisten optischen Materialien sehr klein sind, reicht die Phase, die innerhalb der Fokusslänge aufgenommen wird, meist nicht aus, um das Spektrum signifikant zu verbreitern. Mit stärkerer Fokussierung lassen sich natürlich höhere Intensitäten erreichen. Allerdings sinkt im selben Maß die Rayleighlänge und damit die Wechselwirkungslänge, so dass sich der Effekt gerade ausgleicht. Da-

her muss der Fokus sozusagen „geführt“ werden, um über eine große Länge eine hohe Intensität zu erreichen. Zur Realisierung dieser notwendigen Bedingung wird der Puls in eine Faser eingekoppelt. Der Mode in der Faser hat, aufgrund des kleinen Durchmessers der Faser von nur wenigen bis einigen hundert Mikrometern, eine stark begrenzte Fläche zu Verfügung. Daher ist die Intensität in der Faser über lange Strecken sehr hoch. Prinzipiell lässt sich die Wechselwirkungslänge bei Glasfasern nun bis hin zu einigen Kilometern verlängern. Allerdings spielt in der Realität die Dispersion der Faser eine Rolle, so dass der Puls immer länger wird, und die Intensität sinkt. Mit einem solchen Aufbau wurden schon in den frühen 80-iger Jahren 100 ps-Pulse zu 30 fs-Pulsen komprimiert [TSS84]. Bei einer single-mode Glasfaser (Durchmesser  $\approx 4 \mu\text{m}$ ) mit Quarzkern ist die Pulsenergie aber auf 50 nJ begrenzt, da sonst die Zerstörschwelle des Materials erreicht wird. Um auch bei viel höheren Pulsenergien durch Selbstphasenmodulation breite Spektren erzeugen zu können, wird das Licht in eine mit Edelgas gefüllte Kapillare eingekoppelt. Die Ionisationsschwelle bei Edelgasen liegt viel höher als die Zerstörschwelle bei Quarz. Allerdings ist auch der nichtlineare Brechungsindex um vier Größenordnungen kleiner, was aber durch die Pulsenergie ausgeglichen wird. Mit dieser Technik (Argonfüllung) und anschließender Pulskompression (s. Kapitel 2.3.4) gelang es 1996 das erste Mal einen 140 fs Puls bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm und einer Energie von  $660 \mu\text{J}$  auf 10 fs bei einer Energie von  $240 \mu\text{J}$  zu verkürzen [NSS96], [NSOS<sup>+</sup>97]. Der auf diese Weise erzeugte, nach unserem Wissen kürzeste Puls ist 3,4 fs lang [YZS<sup>+</sup>03].

## Moden

Im Gegensatz zu single-mode-Fasern mit Quarzkern unterstützen Kapillaren (der Mantel besteht ebenfalls aus Quarzglas) viele Moden. Möglich sind Transversal-Elektrische Moden  $\text{TE}_{0m}$ , Transversal-Magnetische Moden  $\text{TM}_{0m}$  und sogenannte Hybridmoden  $\text{EH}_{nm}$ . Dabei erfahren alle Moden aufgrund der Tatsache, dass das Brechungsindexverhältnis von Mantel zu Kern (Quarz/Edelgas  $\nu \approx 1.47/1$ ) größer eins ist, eine starke Dämpfung in der Kapillare (keine Totalreflexion an der Grenzfläche vom Kern zum Mantel). Allerdings unterscheidet sich die Dämpfung für die verschiedenen Moden. Ist das Laserlicht linear polarisiert, werden nur die EH-Moden effektiv angeregt, so dass nur diese hier betrachtet werden. Die Dämpfungskonstante  $\alpha_{nm}$  für die  $\text{EH}_{nm}$  ( $n \neq 0$ ) ist durch

$$\alpha_{nm} = \left( \frac{u_{nm}}{2\pi} \right)^2 \frac{\lambda_0^2}{r^3} \frac{\nu^2 + 1}{2\sqrt{\nu - 1}} \quad (2.17)$$

gegeben [MS64]. Dabei ist  $u_{nm}$  die  $m$ -te Nullstelle der Besselfunktion  $J_{n-1}(u_{nm}) = 0$ ,  $r$  der Radius der Kapillare,  $\lambda_0$  die Zentralwellenlänge. Daraus folgt, dass die  $\text{EH}_{11}$ -Mode die kleinste Dämpfung erfährt. Außerdem sind die Abhängigkeiten von der

### 2.3. Die Erzeugung ultra-kurzer intensiver Laserpulse

---

Wellenlänge ( $\alpha_{nm} \propto \lambda_0^2$ ) und des Kapillarradius  $\alpha_{nm} \propto 1/r^3$  erkennbar. Für die im Experiment verwendete Kapillare ( $r = 100 \mu\text{m}$  und  $L = 82 \text{ cm}$ ) und Wellenlänge  $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$  liegt der Verlust für die  $\text{EH}_{11}$ -Mode bei 10,7%. Der Verlust für die nächste Mode ( $\text{EH}_{12}$ ) liegt schon bei 44,8% und für alle anderen noch höher. Ein Problem ist die unterschiedliche Dämpfung für verschiedene Wellenlängen. So unterscheidet sich die Dämpfungskonstante bei 600 nm um mehr als ein Faktor zwei von der bei 900 nm. Da die besonders weit außen liegenden Wellenlängenanteile bzw. Frequenzanteile erst am Ende der Kapillare entstehen, wirkt sich die unterschiedliche Dämpfung nicht so stark aus. Trotzdem wird das Spektrum bei kleineren Wellenlängen stärker gewichtet werden<sup>6</sup>.

Ein andere wichtiger Punkt ist die Einkoppeleffizienz des Laserlichts in die Kapillare, da sich nur mit der Anpassung des einkommenden Gaußstrahls an eine Fasermode diese effizient anregen lässt. Dazu muss der Überlapp des Gaußstrahls mit den unterschiedlichen Moden ausgewertet werden:

$$\eta = \frac{4 \left( \int J_0(u_{1m} \frac{r'}{r}) \cdot e^{-r'^2/w^2} r dr \right)^2}{w^2 \int |J_0(u_{1m} \frac{r'}{r})|^2 r dr} \quad [\text{NSS}^+98]. \quad (2.18)$$

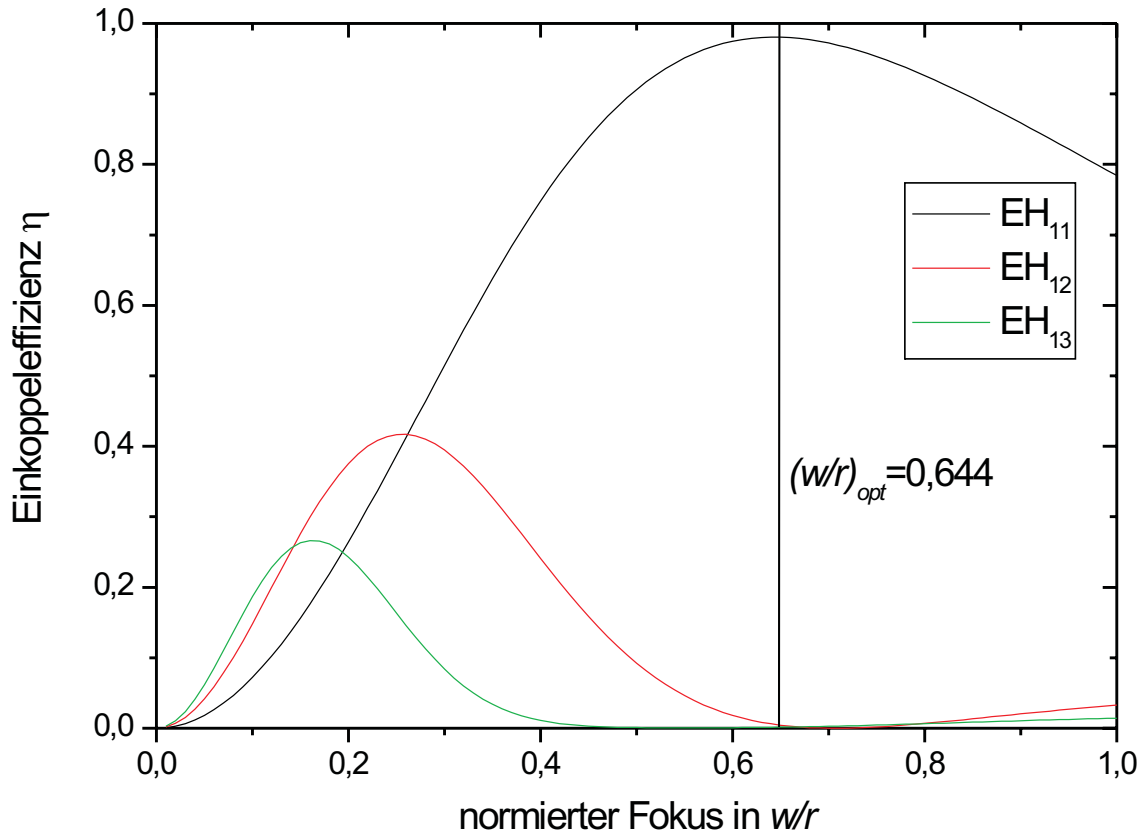
Abbildung 2.6 zeigt die Einkoppeleffizienz für die verschiedenen Moden als Funktion des Strahlradius im Fokus  $w$  in Einheiten des Kapillarradius  $r$ . Es zeigt sich, dass nur in die  $\text{EH}_{11}$  Mode effizient Energie eingekoppelt werden kann. Das Optimum von 98% liegt für den Fokusradius des Gausstrahls bei  $w = 0,644 \cdot r$  (128  $\mu\text{m}$  Fokusedurchmesser bei der verwendeten Kapillare). Bei diesem Wert wird in die anderen Moden nahezu keine Leistung eingekoppelt, so dass die Lichtleitung nur in der  $\text{EH}_{11}$ -Mode stattfindet. Mit der oben ausgerechneten Dämpfung lassen sich damit theoretisch 87,5% der Pulsenergie durch die Kapillare transferieren. Praktisch sind es 40-50%. Der Unterschied kommt zum einem durch Unvollkommenheiten der Kapillare zustande (Variation des Durchmesser mit der Länge; Kratzer und Verunreinigungen auf der inneren Oberfläche). Zum anderen ist der vom Titansaphirverstärkersystem emittierte Strahl kein reiner Gaußstrahl (Spezifikation:  $M^2 < 2$ ). Dadurch sinkt die Einkoppeleffizienz drastisch.

#### Astigmatismus

Des weiteren ist der Strahl nach dem Prismenkompressor stark astigmatisch. Das heißt, dass sich die Strahlparameter parallel (p-Ebene) und senkrecht zum Lasertisch (s-Ebene) unterscheiden. Weder die Divergenz des Strahls noch die Position des Fokus stimmen in den beiden Ebenen überein. Mit einem solchen Strahl kann die Einkopplung in die Kapillare nicht effizient sein.

---

<sup>6</sup>Das wird in den experimentell erzeugten Spektren auch beobachtet (s. Kapitel 2.3.3).



**Abbildung 2.6:** Die Abbildung zeigt die Einkoppeleffizienz für die verschiedenen Moden als Funktion des Fokusradius.

Um den Astigmatismus auszugleichen, wurde ein Spiegelteleskop, bestehend aus sphärischen Hohlspiegeln aufgebaut. Wenn ein solcher Hohlspiegel um einen Winkel  $\beta$  gekippt wird, ändert sich die Brennweite ( $f$ ) in p- und s-Richtung unterschiedlich

$$\begin{aligned} f_p &= f \cos \beta < f \\ f_s &= \frac{f}{\cos \beta} > f. \end{aligned} \quad (2.19)$$

Damit ist es möglich, die Strahlparameter in den beiden Ebenen unterschiedlich zu ändern und den Astigmatismus auszugleichen.

Dazu werden zuerst die Strahlparameter mit Hilfe einer CCD-Kamera hinter einer Linse bestimmt. Mit einem Mathematikscript (s. Anhang B.1) werden dann eine Kombination von einem Konvex- und einem Konkavspiegel und die dazugehörigen Winkel gesucht. Typische Brennweiten sind 0,5-0,75 m und (-0,25)- (-0,5) m. Die Winkel liegen zwischen  $20^\circ$  und  $45^\circ$ .

### 2.3. Die Erzeugung ultra-kurzer intensiver Laserpulse

---

Edelgas	He	Ne	Ar	Kr	Xe
Hyperpolarisierbarkeit $\gamma_{1111}^{(3)}$ in $10^{-64} \text{ Cm}^4/\text{V}^3$	1,13	2,03	26,5	72,2	212

**Tabelle 2.1:** Die Tabelle zeigt die gemessenen Hyperpolarisierbarkeiten 3. Ordnung für die verschiedenen Edelgase bei  $\lambda = 1055 \text{ nm}$  unter Normalbedingungen ( $p_0 = 1 \text{ atm}$ ,  $T_0 = 0^\circ \text{C}$ ) [LLP85].

#### Nichtlineare Koeffizienten und Faserdispersion

Um abschätzen zu können, wie lang eine solche Kapillare sein muss und welcher Innendurchmesser zweckmäßig ist, müssen die nichtlinearen Brechungsindizes für die verschiedenen Edelgase und die Dispersion in der Faser abgeschätzt werden. Der nichtlineare Brechungsindex  $n_2$  ist durch folgende Gleichung gegeben:

$$n_2 = \frac{3}{4n_0^2 c \varepsilon_0} \chi^{(3)}. \quad (2.20)$$

$c$  ist die Lichtgeschwindigkeit,  $n_0$  der Brechungsindex des optischen Materials (die Wellenlängenabhängigkeit wird hier vernachlässigt) und  $\chi^{(3)}$  bezeichnet die Suszeptibilität 3. Ordnung, die durch

$$\begin{aligned} \chi^{(3)} &= \frac{1}{\varepsilon_0} N L^{(4)} \gamma_{1111}^{(3)} \\ &= \frac{p \cdot L^{(4)}}{\varepsilon_0 \cdot kT} \gamma_{1111}^{(3)} \end{aligned} \quad (2.21)$$

gegeben ist [LLP85].  $N = p/kT$  ist die Teilchendichte und  $\gamma_{1111}^{(3)}$  die Hyperpolarisierbarkeit 3. Ordnung ( $p$ : Druck,  $k$ : Boltzmannkonstante,  $T$ : Temperatur). Die Tabelle 2.1 zeigt die gemessenen Hyperpolarisierbarkeiten für die verschiedenen Edelgase bei  $\lambda = 1055 \text{ nm}$ . Bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 695 \text{ nm}$  liegen die Werte nur um ungefähr 10% höher, so dass die Wellenlängenabhängigkeit vernachlässigt werden kann. Die nichtlineare Länge  $L_n = \frac{A_{eff} \cdot c}{n_2 \omega_0 P_0}$  mit der effektiven Modenfläche  $A_{eff}$  und der Pulsspitzenleistung  $P_0$  gibt an, bei welcher Länge das Spektrum die doppelte spektrale Breite gewonnen hat [TSS84]. Bei einem Innendurchmesser von  $200 \mu\text{m}$ , einer Pulsenergie von  $250 \mu\text{J}$  und Pulsdauer von  $25 \text{ fs}$  ist  $L_n \approx 20 \text{ cm}$ , wenn als Gas Argon verwendet wird.

Die Dispersion in der Faser setzt sich aus zwei Teilen zusammen. Der erste Teil ist die Dispersion des Mediums also des Edelgases. Die Tabelle 2.2 gibt für einige Edelgase die aus den Sellmeiergleichungen ermittelten Dispersionskoeffizienten zweiter und dritter Ordnung an [DK60]. Der zweite Teil ist die Dispersion der Faser selbst. Während der Imaginärteil der Modengleichung, welche die Lösung der Maxwellgleichung unter den Randbedingungen der Kapillare ist, die Dämpfungskonstante

darstellt, stellt der Realteil die Phase dar

$$k(\omega) = \frac{\omega}{c} \left( 1 - \frac{1}{2} \left( \frac{u_{nm} \cdot c}{\omega \cdot r} \right)^2 \right). \quad (2.22)$$

Die Auswertung der zweiten Ableitung bei der Trägerfrequenz  $\omega_0$  ist die Dispersion zweiter Ordnung:

$$\left. \frac{\partial^2 k(\omega)}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0} = -\frac{u_{nm}^2 \cdot c}{\omega_0^3 \cdot r^2}. \quad (2.23)$$

Die *GDD* der Moden in der Kapillare ist negativ. Mit  $u_{11} = 2,405$  für die verlustarme  $\text{EH}_{11}$ -Mode in einer Kapillare mit  $200 \mu\text{m}$  Innendurchmesser beträgt sie  $-1,35 \text{ fs}^2/\text{m}$ . Ähnlich der nichtlinearen Länge lässt sich eine Dispersionslänge  $L_d = \tau_{FWHM}^2 / (4|k_2| \ln 2)$  definieren, bei der Puls auf die doppelte Länge angewachsen ist. Bei einer Kapillare mit dem Innendurchmesser von  $200 \mu\text{m}$ , einer Pulsdauer von  $25 \text{ fs}$  und  $1 \text{ bar}$  Argonfüllung beträgt sie  $12,5 \text{ m}$ . Das ist wesentlich mehr als die nichtlineare Länge, so dass das Spektrum sich auf Distanzen verbreitert, bei denen ein  $25 \text{ fs}$ -Puls sich nicht signifikant verlängert. Allerdings ist zu beachten, dass mit breiter werdendem Spektrum auch die Auswirkung der Dispersion auf den Puls steigt und damit die Dispersionslänge sinkt. Diese Größen beeinflussen sich also gegenseitig, was aus der Propagationsgleichung ersichtlich wird:

$$-i \frac{\partial A(z, t)}{\partial z} = \frac{k_2}{2} \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} - \gamma |A|^2 A. \quad (2.24)$$

Diese Gleichung mit dem nichtlinearen Parameter  $\gamma = \frac{\omega_0 n_2}{c A_{eff}}$  hat die Form einer nichtlinearen Schrödingergleichung, und ist nur numerisch auswertbar. Auf eine weitere Diskussion oder Auswertung wird hier im Weiteren verzichtet und auf die Literatur verwiesen [Mor02], [Agr89].

Aus praktischen Erwägungen (Lasertischgröße) und mit Blick auf die Modenverluste pro Länge wurde die Kapillare bei einem Innendurchmesser von  $200 \mu\text{m}$  auf  $82 \text{ cm}$  begrenzt.

### 2.3.3 Spektren

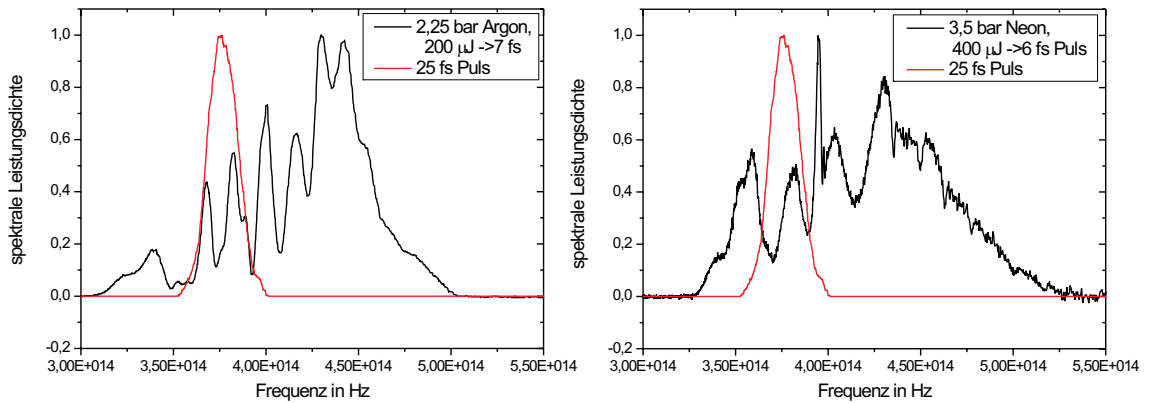
Abbildung 2.7 zeigt zwei typische Spektren für die Befüllung der Kapillare mit Argon und Neon. Obwohl Argon eine um einen Faktor 10 größere Hyperpolarisierbarkeit als

Edelgas	He	Ne	Ar	Luft
GDD in $\text{fs}^2/(\text{m}\cdot\text{bar})$	1,04	2,1	19,0	19,8
TOD in $\text{fs}^3/(\text{m}\cdot\text{bar})$	0,5	0,9	8,2	8,4

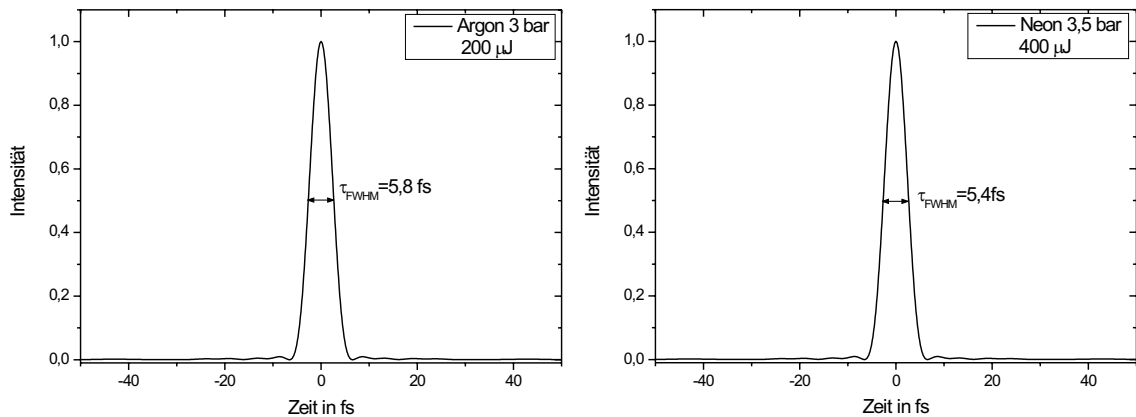
**Tabelle 2.2:** Die Tabelle gibt für einige Edelgase die aus den Sellmeiergleichungen ermittelten Dispersionskoeffizienten zweiter und dritter Ordnung an [DK60].



### 2.3. Die Erzeugung ultra-kurzer intensiver Laserpulse



**Abbildung 2.7:** Die Abbildung zeigt die durch Selbstphasenmodulation gewonnenen Spektren bei der Füllung der Kapillare mit Argon und Neon im Vergleich zum ursprünglichen Spektrum.

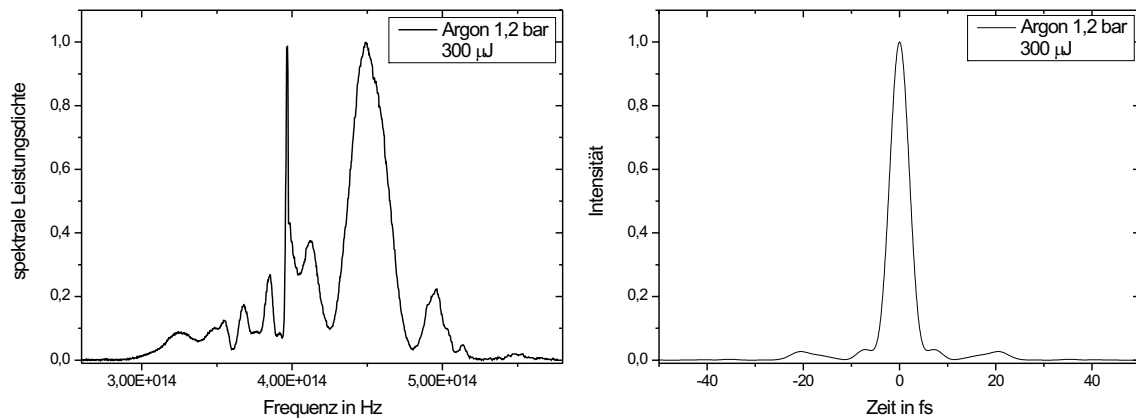


**Abbildung 2.8:** Die Abbildung zeigt die fourierlimitierten Pulse der Spektren aus Abbildung 2.7.

Neon besitzt, und sich die Drücke kaum sowie die Pulsenergien nur um einen Faktor zwei unterscheiden, ist das Spektrum bei der Neonbefüllung ähnlich breit und unterstützt aufgrund seiner Form einen kürzeren fourierlimitierten Puls (s. Abb. 2.8). Deutlich ist bei beiden Spektren die Verschiebung der Spektren zu hohen Frequenzen zu erkennen, was sicherlich auch mit der angesprochenen Abhängigkeit der Dämpfungskonstante der Moden von der Wellenlänge bzw. Frequenz zusammenhängt. Die Spektren sind, wie erwartet, stark moduliert.

Die Halbwertsbreite bei solch stark strukturierten Spektren hat eine nur begrenzte Aussagekraft. Vielmehr ist es notwendig sich das Fourierlimit der Spektren anzusehen, wie sie Abbildung 2.8 zeigt. Die Pulsdauern, die sich mit den gezeigten Spektren erreichen lassen, liegen bei 5-6 fs. Trotz der starken Modulation der Spektren sind die daraus resultierenden Vor- und Nachpulse recht klein, aber bei Argon deutlich sichtbar.

Die Form der Spektren hängt allerdings sehr stark von der Einkopplung, der ein-



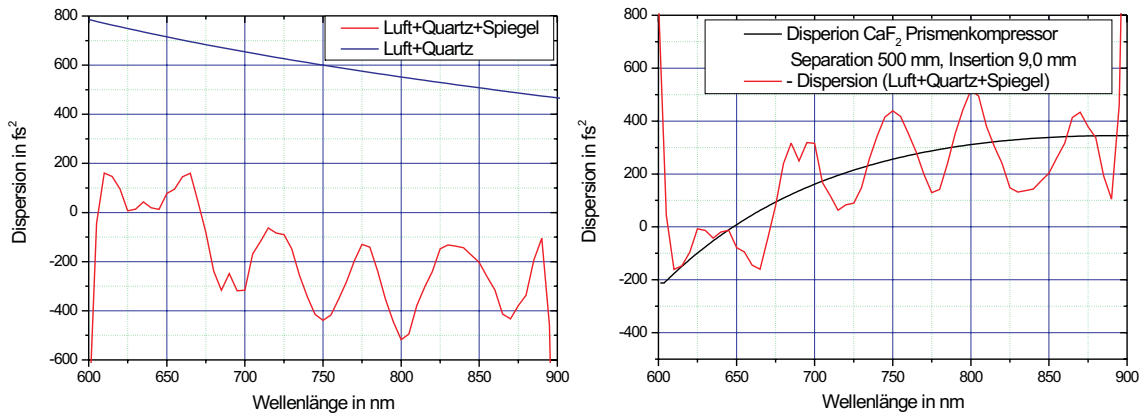
**Abbildung 2.9:** Die Abbildung zeigt ein Beispiel für ein „schlechtes“ Spektrum und den dazugehörigen fourierlimitierten Pulsverlauf.

gekoppelten Leistung, dem Gasdruck in der Kapillare und dem verwendeten Gas ab. Nicht zuletzt beeinflussen die realen physikalischen Gegebenheiten, wie die Abweichungen des ankommenden Strahls vom Gaußstrahl, die Verunreinigungen und Kratzer in der Kapillare und die thermischen Fluktuationen im Gas und im Quarzglas (besonders am Eingang, wo viel Leistung verloren geht), die Spektren. Abbildung 2.9 zeigt ein „schlechtes“ Spektrum für Argon mit dem dazugehörigen fourierlimitierten Pulsverlauf. Die erreichbare Pulsdauer beträgt sogar nur 4,8 fs, aber es sind deutliche Vor- und Nachpulse zu erkennen, die durch die starke Modulation des Spektrums entstehen. Durch eine geeignete Justage lassen sich mit Neon aber nahezu immer gute Spektren erzeugen. Mit Argon ist dies schwieriger, da das Gas zum Teil schon ionisiert wird, wobei sich das Spektrum dramatisch ändert, zu noch höheren Frequenzen verschoben wird und dominante Strukturen zeigt, die zu Satellitenpulsen führen. Bei Verwendung von Neon ist allerdings aufgrund des viel kleineren nichtlinearen Brechungsindex die volle, vom Verstärker emittierte Pulsenergie nötig, die nicht immer zur Verfügung steht, um Spektren zu erzeugen, die breit genug sind um 6 fs Pulse zu unterstützen. Bei Fülldrücken über 3 bar werden die thermischen Fluktuationen im Gas zu groß, so dass ein stabiler Messbetrieb schwierig wird. Außerdem wächst die Breite des Spektrums bei zu hohen Drücken nicht mehr linear mit dem Druck, so dass eine weitere Erhöhung des Drucks auch nur bedingt sinnvoll ist.

### 2.3.4 Dispersion

Nachdem die Spektren, die in der Kapillare erzeugt werden, ausreichend breit sind, um 6-7 fs-Pulse zu unterstützen, müssen die Pulse noch zu diesem Fourierlimit komprimiert werden. Dazu ist es notwendig, die Dispersion des gesamten optischen Wegs

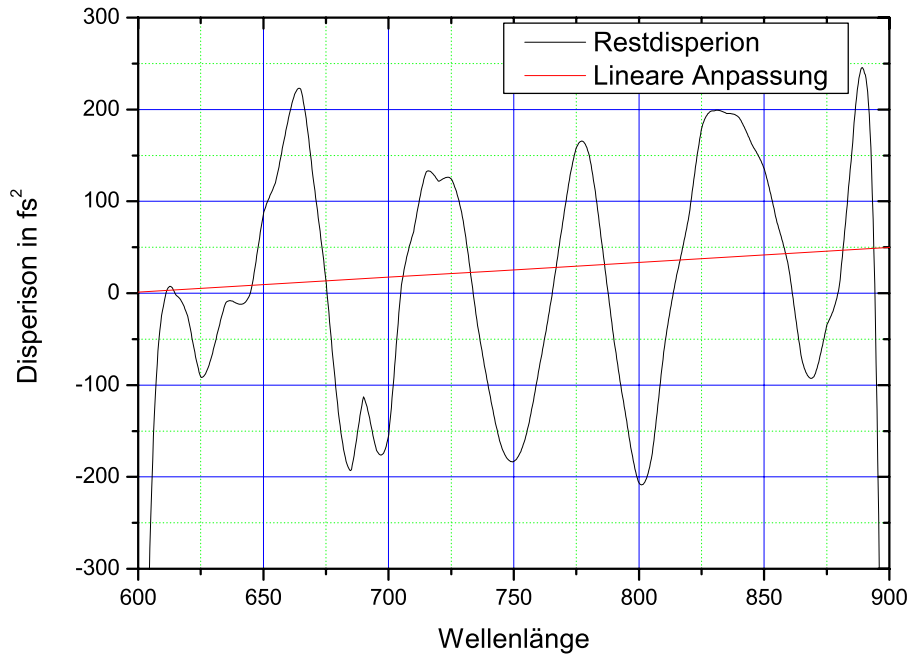
### 2.3. Die Erzeugung ultra-kurzer intensiver Laserpulse



**Abbildung 2.10:** Die linke Abbildung zeigt die Dispersion, die durch die Propagation durch 16 m Luft und 6,5 mm entsteht (blaue Kurve) und wie sich diese Dispersion ändert, wenn noch 16 Reflexionen an dispersiven Spiegeln dazukommen (rote Kurve). In der rechten Abbildung wurde diese Gesamtdispersion negiert, und die Dispersionskurve eines Calciumfluoridprismenkompressors überlagert (schwarze Kurve), um abschätzen zu können, bei welchen Parametern dieser die noch vorhandene Dispersion ausgleicht.

von der Kapillare bis in die Vakuumkammer des Reaktionsmikroskops auszugleichen. Des weiteren entsteht durch die Selbstphasenmodulation selbst ein Chirp im Puls (s. Kapitel 2.3.1).

Der optische Weg in die Vakuumkammer setzt sich aus einem Austrittsfenster aus der Gaskammer, in der die Kapillare liegt (0,5 mm Quarzglas), aus ungefähr 16 m Luft und einem Eintrittsfenster in das Reaktionsmikroskop (6 mm Quarzglas) zusammen. Die Dispersion der Wegstrecke als Funktion der Wellenlänge (s. Abbildung 2.10 blaue Kurve) lässt sich aus den Sellmeiergleichungen (s. Anhang A.2) errechnen. Bei der Zentralwellenlänge von 750 nm (Spektrum verschiebt sich zu höheren Frequenzen) beträgt  $k_2$  schon  $600 \text{ fs}^2$ . Diese Dispersion wird mit speziell entworfenen Spiegeln, die pro Reflexion einen bestimmten Betrag an negativer Dispersion einführen, ausgeglichen. Allerdings führen diese Spiegel nur zweite Ordnung Dispersion ein. Die roten Kurven in Abbildung 2.10 zeigen, wie sich die Dispersionskurve verschiebt. Dabei handelt es sich um 16 Reflexionen an unterschiedlichen Spiegeln, deren Dispersionskurven gemessen wurden und alle einen etwas anderen Dispersionsverlauf zeigen. Mit diesen Spiegeln ist die zweite Ordnung bei 750 nm um ungefähr  $200 \text{ fs}^2$  überkompensiert und darüber hinaus ist eine noch eine sehr große Dispersion dritter Ordnung vorhanden (Anstieg der Kurve). Auch die vierte Ordnung Dispersion (Krümmung der Kurve) kann bei solch kurzen Pulsen ein Rolle spielen und muss beachtet werden. Im rechten Teil der Abbildung 2.10 wurde die Dispersion der Wegstrecke und der Spiegel mit minus eins multipliziert (rote Kurve), um zu sehen, welche optischen Elemente diese Dispersionskurve am besten ausgleichen können.



**Abbildung 2.11:** Die Abbildung zeigt die nach der Kompensation der Dispersion des optischen Wegs (s. Text) noch bestehende Restdispersion und eine lineare Anpassung.

Ein Prismenkompressor [FMG84], [Mor03] aus Calciumfluoridprismen (Apexwinkel von  $69,91^\circ$ ) mit dem Abstand von 500 mm und der Insertion<sup>7</sup> von 9,0 mm (schwarze Kurve) gleicht die noch vorhandene Dispersion bis zur vierten Ordnung gut aus.

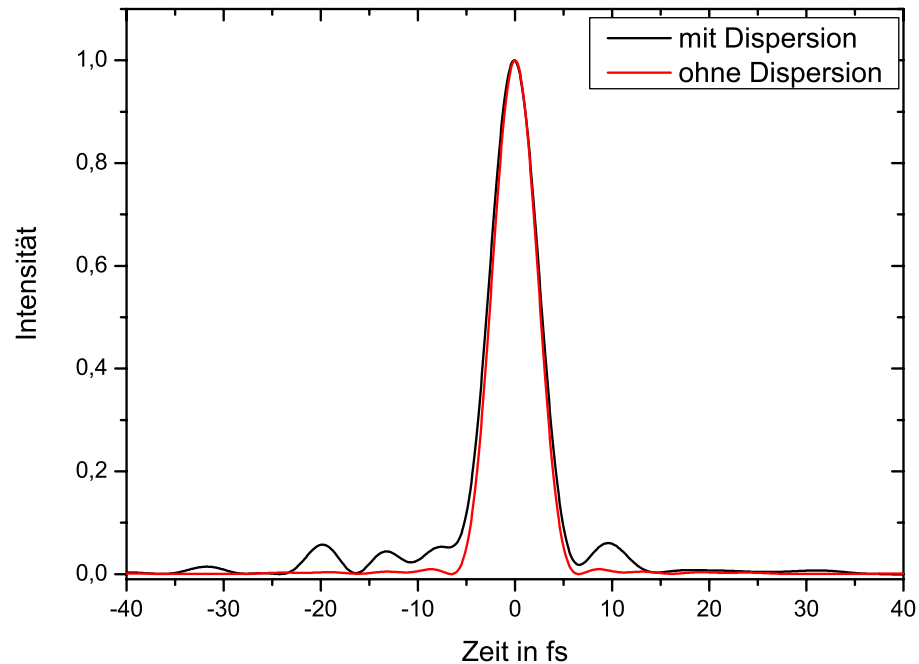
Der zeitliche Verlauf des Pulses mit der dann noch existierenden Restdispersion (s. Abb. 2.11) und dem mit Neon erzeugten Spektrum aus Abbildung 2.7 ist in Abbildung 2.12 (schwarz) im Vergleich zum Fourierlimit (rot) gezeigt. Die Pulslängen sind praktisch identisch, und lediglich einige kleinere Vorpulse sowie ein Nachpuls unterscheiden die beiden voneinander. Dies deutet auf eine noch ungenügende Kompensation der Dispersion dritter Ordnung hin, was auch der Grund für die leichte Asymmetrie des Hauptpulses ist. Damit ist gezeigt, dass sich die Dispersion des optischen Wegs mit den vorhandenen Spiegeln in Kombination mit einem Calciumfluoridprismenkompressor sehr gut ausgleichen lässt.

Durch ein noch bessere Wahl der Prismenkompressorlänge und der Insertion lässt sich auch die in Abbildung 2.11 gezeigte, noch vorhandene Restdispersion ausgleichen. Allerdings ist eine genauere theoretische Analyse in diesem Fall nicht unbedingt sinnvoll, da die Dispersion des Pulses am Ausgang der Kapillare unbekannt ist. Sie entsteht einerseits durch die nichtlineare Phase bei der Selbstphasenmodulation und andererseits durch die Material- und Modendispersion. Die Dispersion als Ursache der Selbstphasenmodulation lässt sich, unter der Voraussetzung, dass der Puls am

<sup>7</sup>Die Insertion gibt an, wie weit von der Spitze weg der Laserstrahl durch die Prismen geht.

### 2.3. Die Erzeugung ultra-kurzer intensiver Laserpulse

---



**Abbildung 2.12:** Die Abbildung zeigt den fourierlimitierten Puls (rote Kurve) des Neonspektrums aus Abbildung 2.7 und den zeitlichen Verlauf des Pulses, der die Restdispersion berücksichtigt (s. Text).

Ende der Kapillare noch 25 fs breit ist, wie folgt grob abschätzen:

Das erzeugte Spektrum unterstützt zum Beispiel im Fourierlimit einen 6 fs langen Puls, welcher jedoch noch 25 fs lang ist, so dass er also einen Chirp haben muss. Nach Gleichung 2.9 verlängert sich der fourierlimitierte Puls unter Einwirkung von Dispersion zweiter Ordnung  $GDD = k_2 \cdot z$ . Daher muss die Dispersion zweiter Ordnung, welche die Selbstphasenmodulation erzeugt, ungefähr so groß sein, wie die  $GDD$ , die nötig ist, einen in diesem Fall 6 fs langen Puls auf 25 fs zu verlängern. Für dieses Beispiel beträgt die  $GDD = 52,6 \text{ fs}^2$ . Diese relativ kleine zusätzliche Dispersion lässt sich bei Neon ohne weiteres durch die Änderung der Länge des Prismenkompressors und der Insertion ausgleichen, zumal diese Dispersion um so kleiner wird, je breiter das erzeugte Spektrum ist. Das ist auf den ersten Blick ein wenig kontraintuitiv. Der Grund liegt darin, dass der Puls um so empfindlicher reagiert, je breiter das Spektrum und um so kürzer der damit verbundene fourierlimitierte Puls ist. Daher reicht bei einem breiteren Spektrum eine kleinere Dispersion aus, den 25 fs Puls zu erzeugen.

Ein signifikanter Anteil an Dispersion dritter Ordnung ist von der Selbstphasenmodulation nicht zu erwarten, da sie bei einem um das Pulsmaximum symmetrischen Eingangspuls ebenfalls symmetrisch ist, und so die Terme mit ungeraden Exponenten in der Entwicklung 2.8 nicht beitragen.

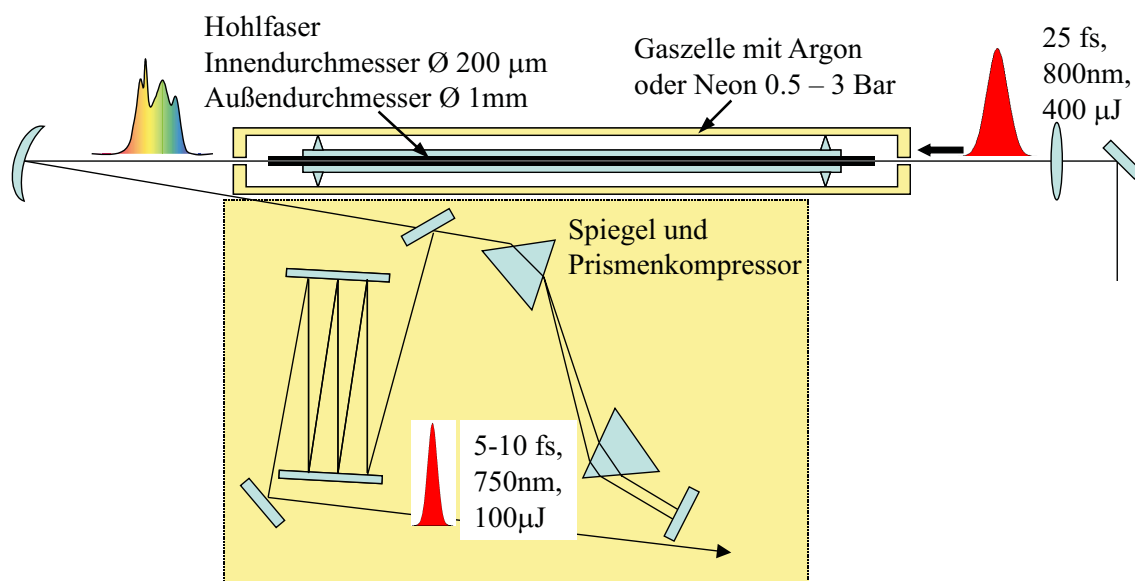


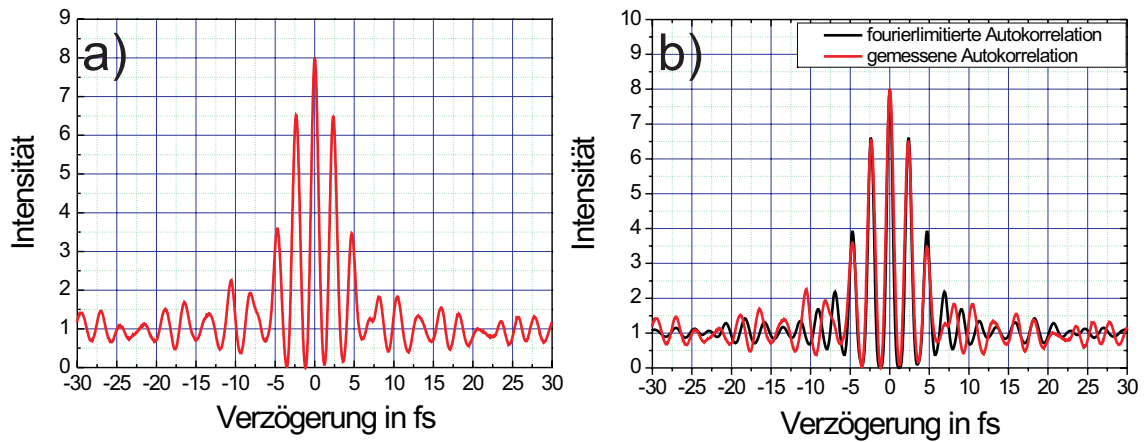
Abbildung 2.13: Die Abbildung zeigt den Gesamtaufbau des Pulscompressors.

Wie oben erwähnt, ist dies eine grobe Abschätzung, die für Neon aufgrund der geringen Dispersion in der Kapillare sicherlich sinnvoll ist, da sich deshalb die Pulsdauer bis zum Ende der Kapillare nicht signifikant ändert. Sie wird daher für Argon aufgrund der relativen hohen Dispersion ( $k_2 = 19 \text{ fs}^2/\text{m}\cdot\text{bar}$ ) keine verlässlichen Werte liefern.

Die Materialdispersion ist bei der Befüllung mit Neon ( $2 \text{ fs}^2/(\text{m}\cdot\text{bar})$ ) ist im Gegensatz zu den  $600 \text{ fs}^2$  des noch folgenden optischen Wegs zu vernachlässigen, zumal die Kapillare selbst noch eine negative Dispersion von  $-1,35 \text{ fs}^2$  hat. Bei der Befüllung mit Argon beträgt die Dispersion weiter Ordnung bei einem Fülldruck von 3 bar immerhin schon  $46,7 \text{ fs}^2$  und die dritter Ordnung  $24,6 \text{ fs}^3$ . Daher kann sie nicht vernachlässigt werden. Sie entspricht aber ungefähr der Dispersion von 1,7 mm Calciumfluorid. So kann einfach die Insertion eines Prismas verkleinert werden, um diese zusätzliche Dispersion auszugleichen.

### 2.3.5 Aufbau

Die Abbildung 2.13 zeigt den Gesamtaufbau des Pulscompressors. Mit einer Linse ( $f=1,5\text{m}$ ) wird der ungefähr 15 mm im Durchmesser messende kollimierte Strahl auf fokussiert. Die Fokusdurchmesser beträgt dann  $100\text{-}105 \mu\text{m}$ . Nach der Gleichung 2.18 sollte die optimale Anpassung an die  $\text{EH}_{11}$  Kapillarmode bei einen Kapillardurchmesser bei einem Fokusdurchmesser von  $128 \mu\text{m}$  liegen. In der Praxis zeigten aber die Messung des von der Kapillare emittierten Strahl, dass die angeregte Mode ohne die Randbedingung der Kapillare in einen Gaußstrahl übergeht, der aus ein  $105 \mu\text{m}$



**Abbildung 2.14:** Die Abbildung zeigt die gemessene und die berechnete fourierlimitierte Autokorrelation eines 5,8 fs Pulses mit dem Spektrum aus Abbildung 2.7, welches mittels Argon als Füllgas erzeugt wurde.

großen Fokus kommt. Da die Auskopplung gerade das inverse Problem der Einkopplung darstellt, lässt sich bei der verwendeten realen Kapillare die  $EH_{11}$ -Mode mit einem Fokusdurchmesser von  $105 \mu\text{m}$  und nicht von  $128 \mu\text{m}$  am besten anregen. Das zeigt auch die Messung der durch die Faser transmittierten Leistung.

Nach der Kapillare passiert der Strahl das Austrittsfenster der Gaskammer, welches nur einen halben Millimeter dick ist und wird je nach gewünschten Strahldurchmesser durch eine Hohlspiegel mit der Brennweite 250 mm bzw. 500 mm kollimiert. Danach durchläuft er die Prismenstrecke und die Phalanx von dispersiven Spiegeln, wobei auf etlichen zwei Reflexionen platziert werden. Auf diese Weise wird die Dispersion vorkompensiert. Erst nach dem Durchlaufen des gesamten Luftwegs und die Propagation durch das Vakuumfenster (6 mm Quarzglas) ist der Puls kurz. Ein 6 fs Puls zum Beispiel ist vor den Vakuumfenster nach Gleichung 2.9 noch länger als 100 fs.

## 2.4 Autokorrelationen

Wie oben geschildert, ist es theoretisch möglich, mit dem soeben beschriebenen und in Abbildung 2.13 gezeigtem Aufbau Pulse mit einer Länge unter 6 fs zu erzeugen und damit dem Fourierlimit des erzeugten Spektrums sehr nahe zu kommen. In Abbildung 2.14 a) ist die gemessene interferometrische Autokorrelation zweiter Ordnung [SKWH80], [DFMS85], [DR96] eines auf die beschriebenen Weise produzierten  $5,8 \pm 0,1$  fs langen Pulses zu sehen. Damit der gemessene Puls die selbe Dispersion wie im Reaktionsmikroskop hat, musste der Puls nach dem Kompressor die selbe Strecke an Luft und ein Duplikat des Vakuumfensters passieren. Das

Spektrum des Pulses wurde mit Argon als Füllgas (2,25 bar) erzeugt und ist in Abbildung 2.7 gezeigt. In Abbildung 2.14 b) wurde die gemessene Autokorrelation mit der berechneten des fourierlimitierten Pulses überlagert. In der Mitte der Autokorrelation stimmt die Messung nahezu mit dem Fourierlimit des Spektrums überein. Nur bei größeren Verzögerungen weicht die Messung stark ab und zeigt wesentlich größere Oszillationen als die berechnete Autokorrelation. Dies ist ein Hinweis auf noch existente Vor- bzw. Nachpulse, die auf eine unzureichende Kompensation der Dispersion dritter und höherer Ordnung hindeuten.

### 2.4.1 Die Autokorrelation n-ter Ordnung

Damit ist gezeigt, dass sich mit dem vorgestellten Puls kompressor auch praktisch Pulse mit Pulsdauern unter 6 fs herstellen lassen. Eine oft geäußerte Kritik ist, dass die mit dem Autokorrelator gemessenen Pulse nicht unbedingt mit denen in der Vakuumkammer vergleichbar sind. Der Grund liegt in den Unzulänglichkeiten des Autokorrelators als Messgerät (Wellenlängenakzeptanz, zusätzliche Dispersion durch Strahlteiler und Verdopplerkristall) und darin, dass die Dispersion des Weges zum Autokorrelator nicht genau mit der des Weges in die Vakuumkammer übereinstimmen kann. Um diesen Kritikpunkten gerecht zu werden und der Pulsdauer sicher zu sein, wurde die Autokorrelation im Reaktionsmikroskop selbst aufgenommen.

Dazu wurden die Pulse in einem Mach-Zender-Interferometer mit nur 0.5 mm dicken Strahlteilern in jeweils zwei Pulse mit einer bestimmten Zeitverzögerung zueinander aufgespalten und kolinear im Fokus des Reaktionsmikroskops überlagert. Dann wurde die Ionenausbeute von Argon bzw. Wasserstoff als Funktion der Verzögerung gemessen. Abbildung 2.15 c)-e) zeigt die so gemessenen Autokorrelationsspektren in Argon bei verschiedenen in das Reaktionsmikroskop eingekoppelten Durchschnittsleistungen<sup>8</sup>. Das Spektrum (a)), die fourierlimitierte Pulsform (b)) und Autokorrelation zweiter Ordnung (f)) sind ebenfalls dargestellt. Die idealisierte Autokorrelation zweiter Ordnung Abbildung 2.15 f) weist in der Mitte 5 Hauptfringes auf. Diese Fringes finden sich bei 44 mW und 50 mW auch in der Autokorrelation im Reaktionsmikroskop wieder. Nur bei 37 mW sind nur drei Hauptpeaks auszumachen. Anhand dieser drei Autokorrelationsspektren bei verschiedenen Pulsenergien ist der Unterschied zur normalen Autokorrelation zweiter Ordnung zu erkennen.

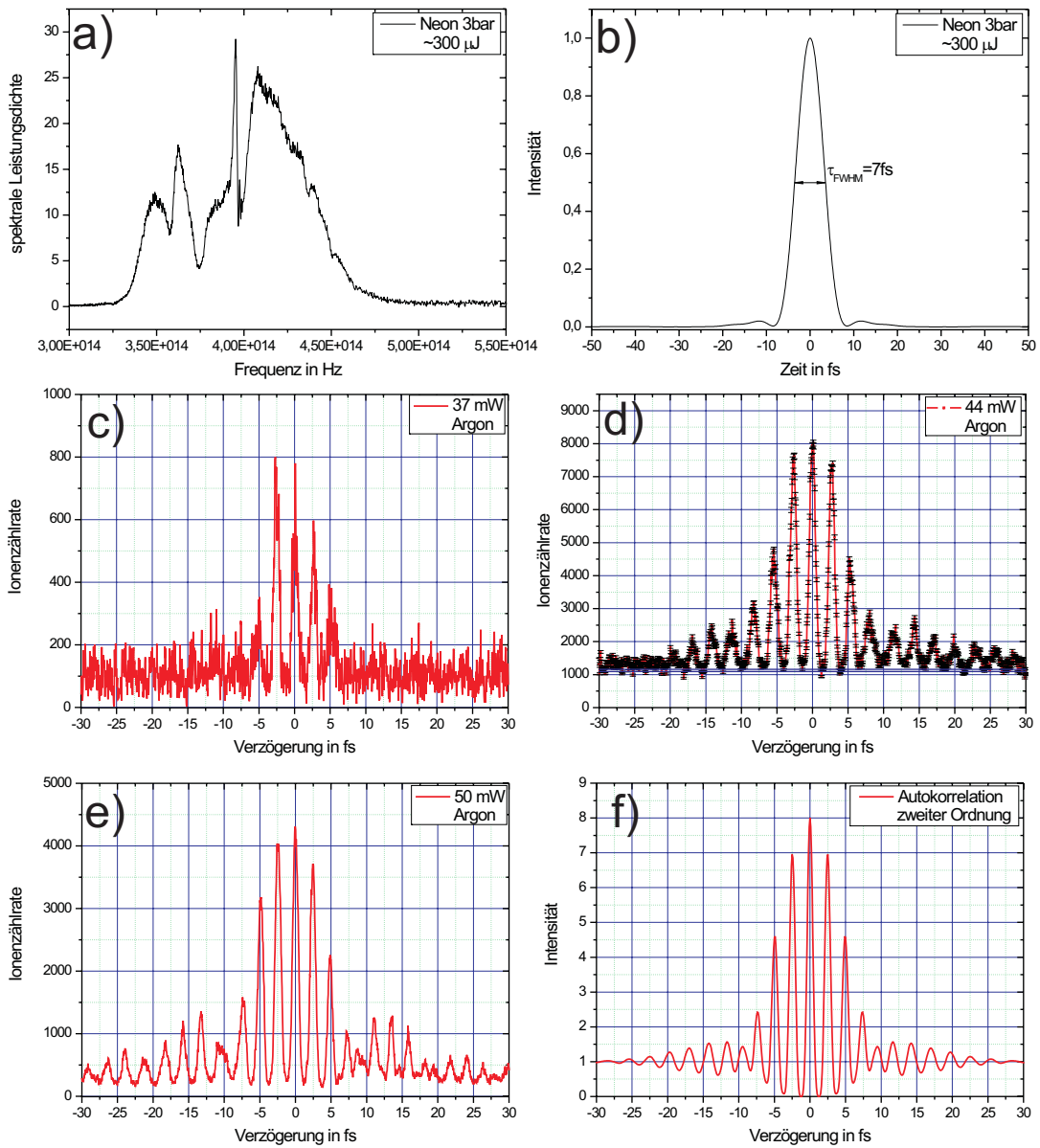
Während bei der normalen Autokorrelation aufgrund der Verdopplung im Verdopplerkristall oder in der Photodiode selbst die Abhängigkeit des Autokorrelationssignals von der Intensität mit  $\propto I^2$  festliegt (zweite Ordnung), können bei der Multiphotonenionisation verschiedene Ordnungen auftreten. Die totalen Wirkungsquerschnitte (s. zum Beispiel Abb. 1.2.2) zeigen sogar eine Änderung in der Steigung

---

<sup>8</sup>Die Pulsenergie ist gerade die Durchschnittsleistung geteilt durch die Repetitionsrate.



## 2.4. Autokorrelationen



**Abbildung 2.15:** Die Abbildung zeigt das Spektrum, die fourierlimitierte Pulsform und die fourierlimitierte Autokorrelation zweiter Ordnung eines Pulses, dessen Spektrum bei einem Fülldruck von 3 bar und einer Eingangspulsenergie von 300 μJ in Neon erzeugt wurde. Des weiteren sind die gemessenen Autokorrelationen im Reaktionsmikroskop für verschiedene eingekoppelte Leistungen zu sehen. Als Messgröße ist die Ionengesamtzählrate von Argon als Funktion der Verzögerung der beiden Pulse gegeneinander aufgetragen.

und damit eine Änderung der Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts von der Intensität als Funktion der Intensität. Im Prinzip reichen bei 750-800 nm Wellenlänge 11 Photonen, um Argon zu ionisieren. Damit ließe sich ein interferometrisches Autokorrelationsspektrum 11. Ordnung ( $\text{Rate} \propto I^{11}$ ) aufnehmen. Allerdings können

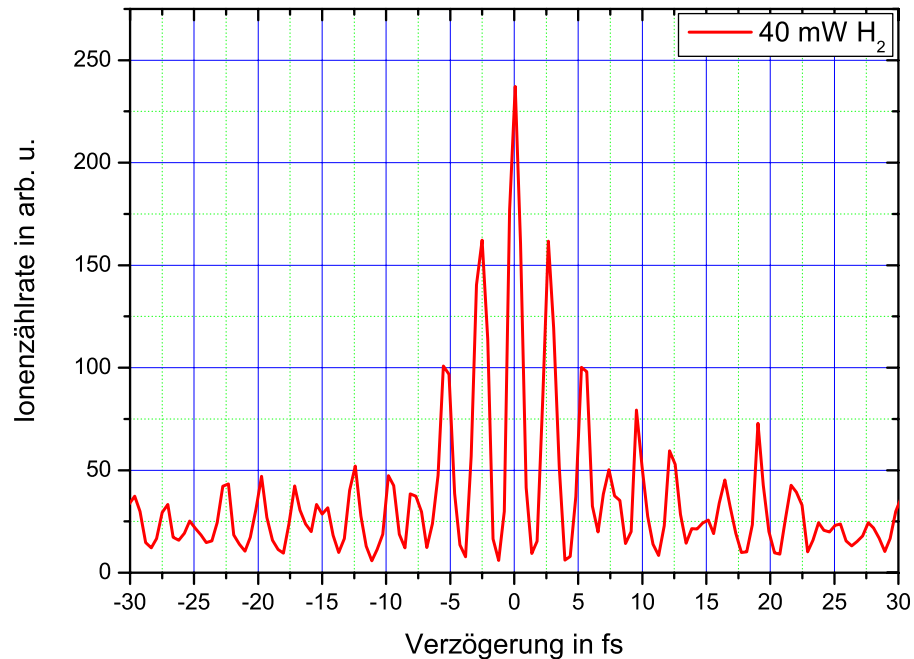
natürlich auch mehr als 11 Photonen aufgenommen werden, was bei höheren Intensitäten sogar wahrscheinlich ist (s. Kapitel 1.2.1). Bei noch höheren Intensitäten, im Tunnelregime, ändert sich diese Abhängigkeit noch einmal. Und wenn schließlich die Wahrscheinlichkeit ein Argonatom innerhalb der Pulsdauer in der Mitte des Fokus zu ionisieren eins wird, steigt die Zählrate mit der Intensität nur noch deshalb, weil die effektive Fokusgröße wächst ( $\propto I^{3/2}$ ).

Wenn nun die beiden durch das Interferometer erzeugten Pulse gegeneinander verschoben werden, interferieren sie miteinander und die Intensität ändert sich von Null bis zum Maximum. Liegt dieses Maximum über der Sättigungsintensität, ändert sich die Abhängigkeit der Zählrate von der momentanen Intensität innerhalb der Autokorrelation und sogar innerhalb eines Fringes sehr stark. In den Spitzen der hohen Fringes ist sie mit  $\propto I^{3/2}$  sehr schwach. Liegt das Maximum deutlich unter der Sättigungsintensität ist die Abhängigkeit der Zählrate von der Intensität immer sehr stark.

Darin liegt auch die Ursache für die Unterschiede zwischen den Autokorrelationen bei den verschiedenen Durchschnittsleistungen. Bei 37 mW (Abb. 2.15 c)) liegt die maximal erreichte Intensität wohl weit unter der Sättigungsintensität für die Einfachionisation von Argon. Nur wenn der Hauptteil des Pulses konstruktiv mit sich selbst interferiert, ist die Intensität hoch genug, dass eine messbare Ionisationsrate entsteht. Sobald die Verzögerung größer wird (größer 5 fs) interferiert nicht mehr der Hauptteil des Pulses mit sich selbst und deshalb wird trotz der konstruktiven Interferenz die Maximalintensität nicht mehr annähernd erreicht, und die Ionenzählrate wird schnell so klein, dass sie vom Hintergrund nicht mehr zu unterscheiden ist.

Bei 44 mW und 50 mW (Abb. 2.15 d) und e)) wurde die Sättigungsintensität im Maximum offensichtlich erreicht. Die Verhältnisse der Höhen der mittleren Fringes sind mit denen in der berechneten Autokorrelation zweiter Ordnung vergleichbar. Das sollte auch so sein, da ja bei hohen Intensitäten die Abhängigkeit der Zählrate von der Intensität mit  $\propto I^{3/2}$  mit der Abhängigkeit des Signals von der Intensität bei der Autokorrelation zweiter Ordnung  $\propto I^2$  ebenfalls vergleichbar ist. Und so ist auch der Kontrast zwischen den äußeren Fringes und den inneren nicht so groß, dass die Äußeren nicht mehr zu erkennen sind. Es sind sogar Strukturen zu erkennen, welche die errechnete Autokorrelation zweiter Ordnung auch aufweist. In dieser sind bei Verzögerungen von -10 bis -25 fs bzw. 10 bis 25 fs Nebenmaxima zu erkennen, die durch die Korrelation des Hauptpulses mit den Vor- bzw. Nachpuls entstehen. Diese sind in der gemessenen Autokorrelation im Reaktionsmikroskop bei 50 mW ebenfalls deutlich zu erkennen.

Damit ist nachgewiesen, dass die erzeugten Pulse mit dem in Abbildung 2.15 a) gezeigten Spektrum auch in der Kammer nur 7 fs lang waren. Selbst kleine durch das Spektrum selbst verursachte Strukturen (Vor- und Nachpulse) sind nachweisbar.



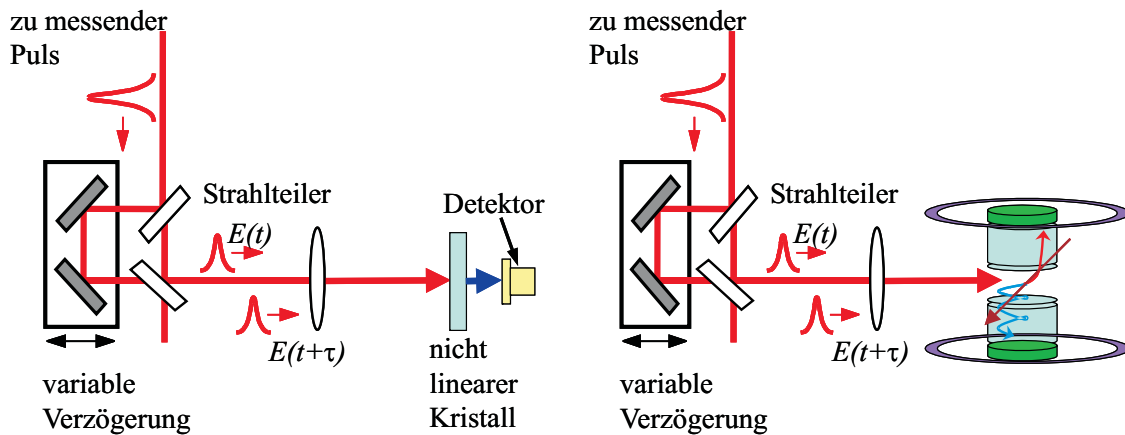
**Abbildung 2.16:** Die Abbildung zeigt ein Autokorrelationsspektrum, welches mit Hilfe der Einfachionisation von Wasserstoffmolekülen im Reaktionsmikroskop aufgenommen wurde.

Diese würden bei unzureichend ausgeglichener Dispersion durch die durch den Phasengang zusätzlich verursachten Minima und Maxima in der Autokorrelation sehr stark verändert werden.

Abbildung 2.16 zeigt ein Beispiel eines Autokorrelationsspektrums, welches mittels der Ionisation von Wasserstoffmolekülen im Reaktionsmikroskop aufgenommen wurde. Strukturen rechts und links von der Hauptinterferenz sind deutlich zu erkennen, was darauf hindeutet, dass die Intensität über der Sättigungsintensität der Einfachionisation von Wasserstoff lag. Damit sollte dieses Autokorrelationsspektrum eine ähnlich Aussagekraft haben, wie die soeben diskutierten Autokorrelationen bei Argon. Anhand der Verhältnisse der Höhen zwischen den Hauptfringes lässt sich die Pulsdauer zu 4,5-5,8 fs abschätzen. Eine genauere Schätzung ist nur mit einer Simulation der erwarteten Autokorrelation möglich, die für die Ionisation von Wasserstoffmolekülen aufgrund der vielen verschiedenen Ionisations- und Fragmentationskanäle nicht ohne weiteres möglich ist.

### Experimenteller Aufbau der Autokorrelation n-ter Ordnung

Nachdem die Autokorrelationen n-ter Ordnung ausführlich diskutiert wurden, soll im letzten Teil dieses Abschnitts noch genauer auf den experimentellen Aufbau zur Messung der Autokorrelationsspektren und die Parameter, unter denen die vorgestellten



**Abbildung 2.17:** Die linke Abbildung zeigt den prinzipiellen Aufbau eines Autokorrelators zweiter Ordnung. Die Teilpulse werden interferometrisch in einem Verdopplungskristall überlagert, und das entstehende Licht mit der doppelten Frequenz wird detektiert. Bei der Autokorrelation  $n$ -ter Ordnung wird der Kristall und der Detektor durch ein Reaktionsmikroskop ersetzt. Im Fokus des Lasers in der Vakuummehrung werden Ionen erzeugt, und die Zählrate abhängig von der Verzögerung aufgenommen.

Spektren gewonnen wurden, eingegangen werden. Der linke Teil der Abbildung 2.17 zeigt den Aufbau eines normalen Autokorrelators. Um ein Autokorrelationspektrum im Reaktionsmikroskop aufzunehmen, muss einfach nur der nichtlineare Kristall, in dem die Verdopplung der Frequenz stattfindet, und der Detektor durch das Reaktionsmikroskop ersetzt werden. Im Autokorrelationspektrum für Argon bei 44 mW in Abbildung 2.15 d) sind beispielhaft die Fehlerbalken und das Untergrundniveau (die doppelte blaue Linie) für die Ionenzählrate eingezeichnet.

Da die Durchschnittsleistung am Ausgang des Interferometers mit der Verzögerung variiert, sind die Leistungen, welche bei den jeweiligen gezeigten Autokorrelationspektren angezeigt werden, vor dem Interferometer gemessen worden. Aus diesen Leistungen lässt sich die maximale Pulsenergie bestimmen<sup>9</sup>. Nicht so einfach ist die maximale Intensität abzuschätzen. Der Fokusbereich in der Vakuummehrung ist nicht bekannt. Aus der Messung des Strahldurchmessers lässt sich der Fokusbereich bei der Argonmessung grob bestimmen:  $2w_0 = 17 \mu\text{m}$ . Daraus folgt, dass die Intensität bei 37 mW Durchschnittsleistung ungefähr  $7,8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  betrug und bei 44 mW bzw. 50 mW eine Intensität von  $9,3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  bzw.  $1,05 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  erreicht wurde. Diese Intensitäten sind aber nur grobe obere Abschätzungen, da Abweichungen des Strahls vom Gaußstrahl die Spitzenintensität erheblich verkleinern können. Außerdem wurde, um den Strahl zu fokussieren, ein sphärischer Hohlspiegel

<sup>9</sup>Maximal ist die in das Reaktionsmikroskop eingekoppelte Leistung, wenn die Verzögerung Null ist.

## 2.5. Bestimmung der Intensität

( $f=0,1\text{m}$ ) verwendet, wodurch der Fokus immer größer als sein theoretisches Limit ist.

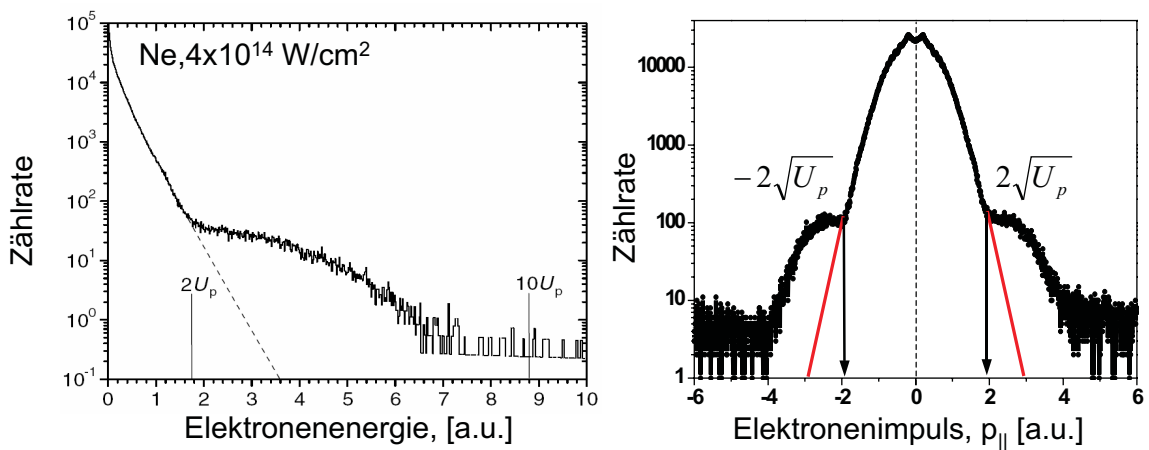
## 2.5 Bestimmung der Intensität

Um die Intensität zuverlässig bestimmen zu können, wird das Elektronenenergie- bzw. Elektronenimpulsspektrum entlang der Polarisationsachse ausgewertet. Nach Gleichung 1.4 beträgt das klassische Maximum des vom Elektron im elektrischen Laserfeld aufgenommenen Driftimpulses ohne Rückstreuung (s. 1.2.3)  $2U_p$ . Das ponderomotive Potential ist dabei von der Intensität abhängig:

$$\begin{aligned} U_p &= \frac{A^2}{4\omega^2} [\text{a.u.}] = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega^2} [\text{J}] \\ &= \frac{\lambda^2 e^2 I}{8\pi^2 m_e c^3 \varepsilon_0} [\text{J}], \end{aligned} \quad (2.25)$$

mit  $e$  der Elektronenladung,  $m_e$  der Elektronenmasse,  $\varepsilon_0$  der Vakuumdielektrizitätskonstante und  $c$  der Lichtgeschwindigkeit.

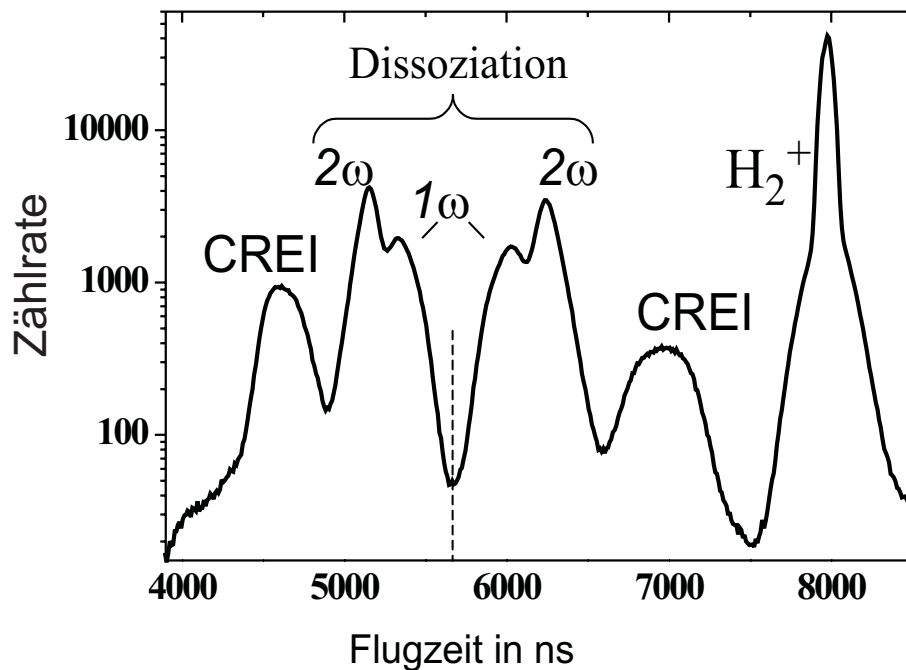
Abbildung 2.18 zeigt ein Elektronenenergiespektrum und das dazugehörige Impulsspektrum entlang der Laserpolarisationsachse für die Einfachionisation von Neon. Deutlich ist das klassische Limit bei  $2U_p$  und das sich anschließende Plateau (s. Kapitel 1.2.3) zu erkennen. Aus der Bestimmung der Impulse bzw. der Energie der Elektronen beim Limit lässt sich die Intensität, bei der das Impuls- bzw. Energiespektrum aufgenommen wurde, je nach Qualität des Spektrums auf besser als 10% genau bestimmen.



**Abbildung 2.18:** Die Abbildung zeigt ein Elektronenenergiespektrum und das dazugehörige Impulsspektrum entlang der Laserpolarisationsachse für die Einfachionisation von Neon. Deutlich ist das klassische Limit bei  $2U_p$  und das sich anschließende Plateau (s. Kapitel 1.2.3) zu erkennen.

## 2.6 Die qualitative Pulsanalyse mittels der Ionisation von Wasserstoff

Wie schon in Kapitel 1.4 vorgestellt, gibt es für das  $H_2^+$ -Ion, welches durch die anfängliche Einfachionisation von  $H_2$  im Laserpuls entstanden ist, eine Vielzahl von Fragmentationskanälen im Laserfeld. So ist es möglich, dass es durch die Aufnahme von einem oder zwei zusätzlichen Photonen in ein Proton und ein Wasserstoffatom dissoziiert. Des weiteren kann das Molekül nach einem zweiten weiteren Ionisationsschritt coulombexplodieren. Der Impuls der beiden Protonen bei der Coulombexplosion hängt, unter Vernachlässigung des Impulses der beiden Elektronen, vom Abstand der beiden zueinander zum Zeitpunkt des zweiten Ionisationsschritts ab. Über die  $1/R$ -Potentialkurve ( $R$ : Protonenabstand) wird dieser auf die kinetische Energie und den Impuls der Protonen abgebildet. Da der Ausgangspunkt der hier



**Abbildung 2.19:** Die Abbildung zeigt ein Flugzeitspektrum bei der Ionisation von Wasserstoffmolekülen mit 23 fs Pulsen ( $0,2 \text{ PW/cm}^2$ ). Die Spektrometerachse war parallel zur Laserpolarisation. Bei ungefähr 8000 ns erreichen die einfach geladenen Wasserstoffmoleküle den Detektor. Die Strukturen bei niedrigerer Flugzeit entstehen durch die Protonen, die bei der Fragmentation von  $H_2^+$  entstehen. Die selben Strukturen sind auch im Protonenenergiespektrum in Abbildung 1.16 zu erkennen. Die gestrichelte Linie bezeichnet für die Protonen den Impuls Null. Die longitudinale Impulsverteilung wäre um diese Linie symmetrisch. Das Flugzeitspektrum ist es nicht, da die Flugzeit nicht linear in den Impuls eingeht [Fis00], [Fis03], [Höh04]. Die Zeitachse zeigt nicht die absolute Flugzeit an.

besprochenen Fragmentation von  $\text{H}_2^+$  das soeben erst einfach ionisierte Wasserstoffmolekül ist, befinden sich die Protonen nicht im Gleichgewichtszustand zueinander, so dass das Moleküllion anfangen wird zu schwingen, auch wenn das Wasserstoffmolekül am Anfang im Schwingungsgrundzustand war. Da der Gleichgewichtsabstand im  $\text{H}_2^+$  größer ist als im  $\text{H}_2$ , werden sich die beiden Protonen als erstes voneinander weg bewegen.

Wie in Kapitel 1.4 ebenfalls schon diskutiert, gibt es einen Bereich von internuklearen Abständen (3-8 a.u.), bei dem der zweite Ionisationsschritt durch einen resonanten Effekt sehr viel wahrscheinlicher ist als bei anderen Abständen. Die Ionisation bei diesen Abständen wurde CREI genannt, und führt immer zu bestimmten kinetischen Energien der Protonen, die im Bereich von 2-5 eV liegen. Abbildung 1.16 zeigt ein Energiespektrum von einem Proton bei der Ionisation mit 23 fs-Pulsen. Dieses Spektrum wird aus den Flugzeitspektren und dem Auftreffort am Detektor errechnet (s. Kapitel 3.1). Die Abbildung 2.19 zeigt das dazugehörige Flugzeitspektrum. Alle Strukturen, die im Protonenenergiespektrum auftreten, sind auch im Flugzeitspektrum sichtbar. Besonders der Peak, der CREI zugeordnet wird, ist deutlich zu erkennen.

Abbildung 2.20 zeigt ebenfalls Flugzeitspektren für verschiedene Pulsdauern und Intensitäten. Die Zählrate der einzelnen Spektren ist zur besseren Übersicht umskaliert worden. Bei 25 fs ist deutlich zu erkennen, dass die Position des CREI-Peaks und damit die Energie der Protonen, welche über diesen Kanal entstehen, unabhängig von der Intensität ist. Nur bei sehr hohen Intensitäten ( $0.5 \text{ PW/cm}^2$ ) verschiebt sich der Peak leicht. Die Ursache liegt darin, dass bei sehr hohen Intensitäten die Wahrscheinlichkeit das  $\text{H}_2^+$ -Ion zu ionisieren auch schon vor dem Erreichen des resonanten Abstandes hoch ist. So verschiebt sich der Ionisationspunkt zu kürzeren Kernabständen, was zu höheren Energien und Impulsen führt<sup>10</sup>.

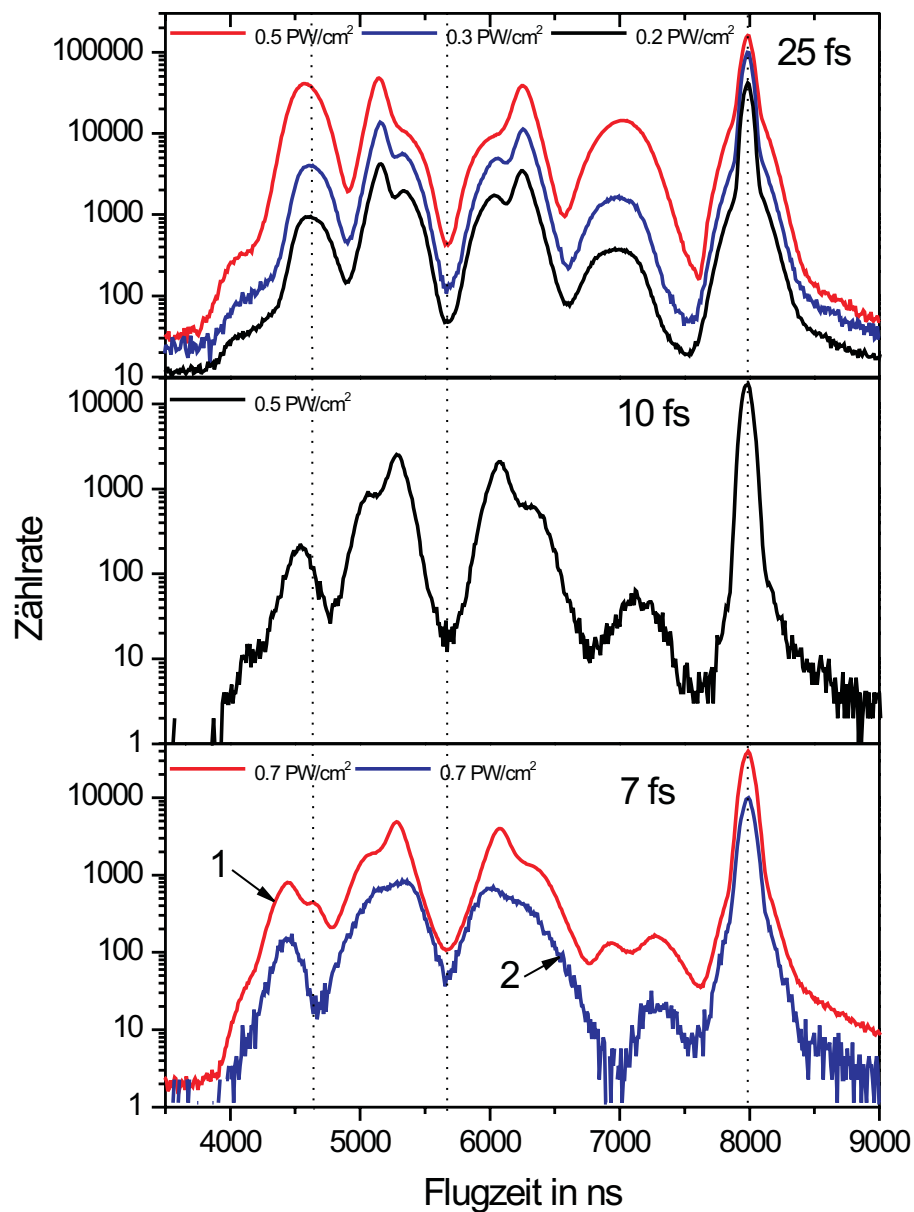
Schon bei nur noch 10 fs-FWHM Pulslänge ändert sich das Spektrum dramatisch. Der CREI-Peak hat sich deutlich zu höheren Impulsen und Energien hin verschoben. Die Verschiebung ist signifikant größer als die, welche bei der selben Intensität von  $0,5 \text{ PW/cm}^2$  bei 25 fs-Pulsen beobachtet wird. Außerdem ist der Anteil dieses Ionisationskanals im Gegensatz zur Dissoziation (die inneren Strukturen, die in Abbildung 2.19 mit  $1\omega$  und  $2\omega$  bezeichnet werden) um mehr als einen Faktor 10 kleiner geworden. Der Grund für die Verschiebung ist die Kürze der Pulse. Simulationen zeigen, dass das Molekül ungefähr 15 bis 30 fs vom ersten Ionisationsschritt an, bei dem  $\text{H}_2^+$  gebildet wird, benötigt, um den resonanten Abstandsbereich zu erreichen [FT03b]. Bei einem sauberen 10 fs Puls, dessen Intensität nicht zu hoch ist, so dass der erste Ionisationsschritt am wahrscheinlichsten im Maximum des Pulses stattfindet (unter

---

<sup>10</sup>Höhere Protonenenergien bzw. Impulse führen im Flugzeitspektrum zu einem größeren Abstand zur Linie, die den Impuls Null für die Protonen kennzeichnet.

der Sättigungsintensität s. auch Kapitel 3.4), klingt der Puls nach der Bildung des  $\text{H}_2^+$ -Ions in ungefähr 10 fs fast vollständig ab. So bleibt dem Molekilion keine Zeit mehr den für die zweite Ionisation optimalen internuklearen Abstand zu erreichen. Natürlich ist es weiterhin möglich bei kürzeren Protonenabständen zu ionisieren, was zu höheren Impulsen und Energien führt, aber nicht so wahrscheinlich ist. Deshalb sinkt ebenfalls der Beitrag zur Gesamtrate über diesen Kanal.

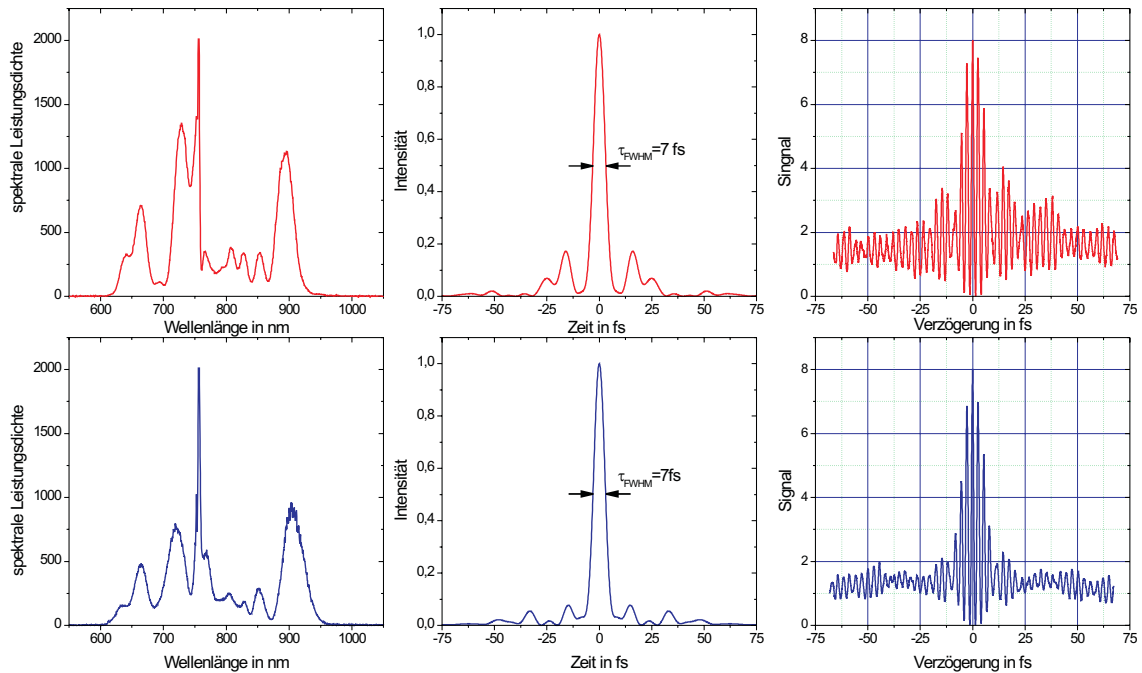
Für Pulse, die nur noch 7 fs-FWHM lang sind, sind zwei verschiedenen Spektren ge-



**Abbildung 2.20:** Die Abbildung zeigt verschiedene Flugzeitspektren für die Ionisation von Wasserstoffmolekülen bei unterschiedlichen Pulslängen und Intensitäten (s. Text).



## 2.6. Die qualitative Pulsanalyse mittels der Ionisation von Wasserstoff



**Abbildung 2.21:** Die Abbildung zeigt die Pulsspektren sowie die daraus berechneten fourierlimitierten Pulsformen und die dazugehörigen, gemessenen Autokorrelationsspektren der Pulse, bei denen die in Abbildung 2.20 für 7 fs Pulse dargestellten Flugzeitspektren beobachtet wurden.

zeigt, welche sich von der Form her besonders im Bereich des CREI-Peaks stark unterscheiden. Die zu den verwendeten Pulsen dazugehörigen Pulsspektren sind zusammen mit den berechneten fourierlimitierten Pulsformen und den gemessenen Autokorrelationsspektren, welche den Berechneten hier nicht gezeigten gleichen, in Abbildung 2.21 gezeigt. Das mit 2 bezeichnete Flugzeitspektrum (blaue Kurve) verhält sich ähnlich wie es von der Diskussion des Spektrums bei 10 fs erwartet wurde. Der CREI-Peak verschiebt sich noch weiter zu höheren Energien und an der Stelle, bei der bei 25 fs ein deutliches Maximum erkennbar war, ist jetzt ein Minimum. Die Pulse, mit denen dieses Spektrum aufgenommen wurde, werden durch die blauen Kurven in den Diagrammen in Abbildung 2.21 charakterisiert. Die Vorpulse und Nachpulse bei diesen Pulsen waren sehr klein und auch das Autokorrelationsspektrum weist nur kleine Strukturen vor und nach dem Interferogramm des Hauptpulses mit sich selbst auf.

Einen ganz und gar unterschiedlichen Verlauf im Bereich des CREI-Peaks zeigt das Flugzeitspektrum, welches mit anderen ebenfalls 7 fs-FWHM langen Pulsen (rote Kurve) aufgenommen wurde. Fast an der Stelle des ursprünglichen CREI-Peaks, wie er bei 25 fs auftrat, erscheint hier neben dem zu höheren Energien verschobenen Peak noch ein zweiter. Die Ursache dafür liegt in der zeitlichen Struktur der verwendeten Pulse. In Abbildung 2.21 werden diese Pulse durch die roten Kurven

charakterisiert. Deutlich sind größere Vor- und Nachpulse 15 und 25 fs entfernt vom Hauptpuls zu erkennen. Auch in der Autokorrelation sind größere Strukturen jenseits der Hauptinterferenz auszumachen. Das heißt aber gleichzeitig, dass bei Zeiten, bei denen ein 7 fs Puls ohne Vor- und Nachpulse schon längst abgeklungen ist, elektrische Feldstärken vorhanden sind, die ausreichend groß sind, um in dem Bereich des Abstandes der Protonen voneinander signifikant zu Ionisationsrate beizutragen, in dem die Wahrscheinlichkeit durch resonante Effekte viel höher als bei anderen Abständen ist. Wie oben erwähnt, beträgt die Zeit zum Erreichen dieses Abstandes gerade 15 bis 30 fs. Die Position des bei diesem Puls aufgetretenen Peaks ist abhängig davon, nach welcher Zeit der Nachpuls dem Hauptpuls folgt. Somit ist es durch die Aufnahme eines Wasserstoffflugzeitspektrums möglich eine Aussage über die Qualität der kurzen Pulse zu machen, mit denen dieses Spektrum aufgenommen wurde. Dabei ist vollkommen sicher, dass es sich wie schon bei der n-ten Autokorrelation im Reaktionsmikroskop um die wirklich am Reaktionsort vorhandenen Pulse handelt.

Auf weitere Details in den Flugzeit- bzw. Protonenenergiespektren, wie zum Beispiel die Änderung der Verhältnisse der Anteile der verschiedenen Dissoziationskanäle zueinander bei verschiedenen Pulslängen, wird im Rahmen dieser Arbeit nicht eingegangen sondern auf die entsprechende Literatur verwiesen [RFZ<sup>+</sup>04].

# Kapitel 3

## Experimentelle Ergebnisse

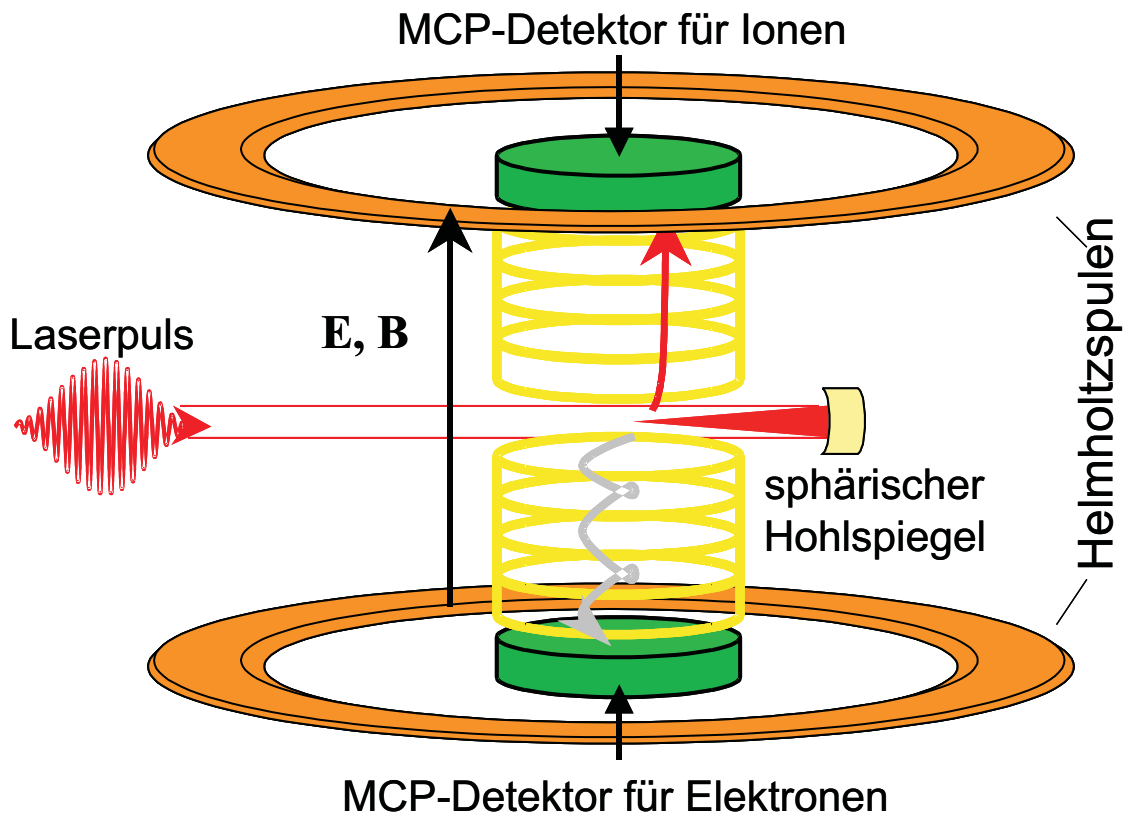
In diesem Kapitel werden die im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen Ergebnisse vorgestellt. Zuerst wird allerdings der experimentelle Aufbau, mit dem diese Daten gewonnen wurden, vorgestellt. Der zweite Teil beschäftigt sich mit resonanten Strukturen bei der *Einfachionisation* von Edelgasen mit 23 fs und 6-7 fs Laserpulsen im Intensitätsbereich der Tunnelionisation. Im dritten Teil wird die Abhängigkeit des differentiellen Wirkungsquerschnitts der *Doppelionisation* bei 25 fs Pulsen im nichtsequentiellen Intensitätsbereich von der Atomstruktur durch Verwendung verschiedener Targetgase untersucht, wobei eine qualitative und quantitative Analyse der Reaktionsquerschnitte zu einer Erklärung der beobachteten longitudinalen Ionenimpulsspektren führt. In den letzten beiden Abschnitten werden die longitudinalen Ionenimpulsspektren für die *Dreifach-* und *Vierfachionisation* von Neon und Argon mit 23 fs und 7 fs kurzen Pulsen vorgestellt. Eine qualitative Diskussion aller möglichen Ionisationspfade der Dreifachionisation lässt generelle Aussagen über die Relevanz der verschiedenen korrelierten und unabhängigen Pfade, die zur Mehrfachionisation von Neon und Argon führen, zu. Im letzten Abschnitt wird dann auf die Unterschiede bei der Mehrfachionisation mit 23 fs und 7 fs Pulsen eingegangen.

Mit Ausnahme jener Spektren, in deren Bildunterschriften anderes vermerkt ist, wurden alle hier vorgestellten Messungen mit 23-25 fs Laserpulsen aus einem Titansaphirlaserverstärker bei einer Zentralwellenlänge von  $\approx 800$  nm aufgenommen.

### 3.1 Das Reaktionsmikroskop

#### Allgemeine Beschreibung des Aufbaus und des Funktionsprinzips

Zur Messung der hier vorgestellten differentiellen Daten wurde ein sogenanntes Reaktionsmikroskop verwendet [UMD<sup>+</sup>03], [JRF<sup>+</sup>04]. Abbildung 3.1 zeigt den prinzipiellen experimentellen Aufbau. Der Laser wird über einen sphärischen Spiegel auf



**Abbildung 3.1:** Die Abbildung zeigt den prinzipiellen experimentelle Aufbau, wie er in Rahmen dieser Arbeit verwendet wurde.

einen Überschallgasstrahl, welcher als Target dient, fokussiert. Die dabei entstehenden Elektronen und Ionen werden durch ein homogenes elektrisches Feld, welches durch Ringelektroden erzeugt wird, vom Ionisationsvolumen zu den Detektoren hin beschleunigt. Die elektrische Feldstärke beträgt je nach Anforderung 1-3 V/cm. Um die Akzeptanz für Elektronen zu erhöhen, wird ein mit einem Helmholtzspulenpaar erzeugtes homogenes Magnetfeld mit der Stärke von etwa 10 Gauss parallel zum elektrischen Feld überlagert. Dadurch werden die Elektronen auf eine Zyklotronbahn gezwungen und zum Elektronendetektor geführt. Das magnetische Feld ist gleichzeitig schwach genug, dass es die Ionen mit ihrer wesentlich größeren Masse kaum beeinflusst. Der Abstand der Detektoren von Reaktionsvolumen beträgt für die Ionen 30 cm und für die Elektronen 20 cm. Als Detektoren dienen Vielkanalplatten (Multi Channel Plates, MCP's) mit einem Durchmesser von 127 mm für die Ionen und 86 mm für die Elektronen. Durch den Einsatz von Delay-line-Anoden [Roe] beträgt die Ortsauflösung der Detektoren in beiden Dimensionen  $100 \mu\text{m}$ . Mittels einer Flugzeitmessung, die von einem Triggersignal, welches durch den Laserpuls ausgelöst wird, gestartet wird und mittels des Auftrefforts auf dem Detektor lassen sich

unter Benutzung der Bewegungsgleichungen geladener Teilchen in den bekannten elektrischen und magnetischen Feldern die anfänglichen Impulse der Elektronen und Ionen nach der Wechselwirkung mit dem Laserpuls rekonstruieren. Da die Elektronen durch das magnetische Feld auf eine Zyklotronbewegung gezwungen werden, kehren sie nach einer Zyklotronperiode, deren Dauer nur von der magnetischen Feldstärke abhängt und damit insbesondere unabhängig vom Anfangsimpuls der Elektronen ist, in der transversalen Ebene<sup>1</sup> zum Ursprungsort zurück. Wenn das Elektron gerade zu diesem Zeitpunkt den Detektor erreicht, kann der transversale Impuls nicht aufgelöst werden, da sich der Radius der Zyklotronbewegung, der vom transversalen Impuls abhängt, dann nicht rekonstruieren lässt. Diese Bereiche, in denen das Spektrometer keine Auflösung in transversaler Richtung hat, werden in den Impuls- und Energiespektren in der vorliegenden Arbeit durch schraffierte Balken gekennzeichnet. Für weitergehende Betrachtungen und die formelle Berechnung der Impulse wird auf die schon bestehende Literatur verwiesen [Fis00, Fis03, Höh04].

#### Spezielle Anforderungen für Laserexperimente

An dieser Stelle sei auf einige wichtige Unterschiede in den Anforderungen zu jenen Reaktionsmikroskopen hingewiesen, die schon seit längerem für Stoßexperimente verwendet werden:

Die räumlichen sowie die zeitlichen Eigenschaften des Fokus eines Gauss'schen, gepulsten Laserstrahls sind um einiges besser als die, die üblicherweise mit Synchrotronstrahlung, Elektronenkanonen, Ionenbeschleunigern oder auch Ionenspeicherringen erreicht werden können. Leicht lassen sich Fokusburchmesser von deutlich unter  $7\ \mu\text{m}$  im Durchmesser und dementsprechende Fokusslängen von unter  $100\ \mu\text{m}$  erzeugen, weshalb in den Laserexperimenten, im Gegensatz zu Stoßexperimenten, die Ausdehnung des Reaktionsvolumens nicht die Impulsauflösung beeinflusst. Daher muss auch keine sogenannte Zeit-, oder eine noch schwieriger zu verwirklichende Ortsfokussierung durch ein spezielles Arrangement des elektrischen Feldes nicht angewendet werden [Fis00, Fis03, Höh04], so dass ohne größere Probleme ein extrem homogenes und paralleles elektrisches Feld sowie magnetisches Feld realisiert werden kann. Besonders die Streufelder, die beim für die Zeitfokussierung notwendigen Übergang zwischen dem Bereich mit elektrischem Feld und dem feldfreien Driftbereich auftreten, können verhindert werden. Die Impulsauflösung wird damit hauptsächlich durch die Zeitauflösung der verwendeten Elektronik, der Ortsauflösung der Detektoren und der internen Temperatur des Überschallstrahls bestimmt.

---

<sup>1</sup>Die transversale Ebene ist die Ebene senkrecht zum elektrischen und magnetischen Feld (Spektrometerachse). Parallel zu dieser Ebene liegen auch die Detektoren. Die longitudinale Achse ist parallel zur Spektrometerachse.

Ganz im Gegensatz zu Stoßexperimenten ist für die hier vorgestellten Experimente mit intensiven Laserpulsen ein sehr niedriger Restgasdruck in der Vakuumkammer sowie eine sehr kleine Targetdichte notwendig, da der Laserpuls nahezu alle Atome und Moleküle, die sich in seinem Fokus befinden, ionisiert. Da die korrelierte Emission aller Elektronen und Ionen gemessen werden soll, sollte sich immer nur ein Atom oder Molekül im Fokusvolumen befinden. Daher wird ein Target mit einer sehr kleinen Dichte von nur  $10^8$  Atomen/cm<sup>3</sup> verwendet, welches mittels einer Überschallexpansion durch eine  $30\ \mu\text{m}$  große Düse erzeugt wird, um es zu kühlen. Der entstehende Überschallstrahl wird durch zwei Skimmer ( $200\ \mu\text{m}$  und  $400\ \mu\text{m}$ ) kollimiert und hat eine Gesamtwegstrecke bis zum Reaktionsvolumen von 2,1 m. Um verschiedene Dichten im Target realisieren zu können, ist es möglich, die Länge des Überschallstrahls von 2 m bis zu 30 cm hinab zu variieren. Des Weiteren besteht die Möglichkeit durch vier individuell einstellbare bewegliche Fahnen direkt vor der Vakuumkammer, in der sich das Spektrometer befindet, die Targetgeometrie mit Mikrometergenauigkeit zu verändern. Drei differentielle Pumpenkompressionsstufen gewährleisten einen Restgasdruck in der Hauptkammer von  $2 \cdot 10^{-11}$  Torr.

### Auflösung und Akzeptanz des Reaktionsmikroskops

Die folgenden Aussagen zur Auflösung und Akzeptanz des verwendeten Reaktionsmikroskops gelten für eine elektrische Feldstärke von 1 V/cm und eine magnetische Feldstärke von 10 Gauss.

Mit der Ortsauflösung der Detektoren von  $100\ \mu\text{m}$  können alle Elektronen mit einer transversalen Energie von  $E_{e\perp} \leq 80\ \text{eV}$  mit einer Auflösung von  $\Delta P_{e\perp} \pm 0.005$  a.u. (ungefähr 330 meV bei  $E_{e\perp} \leq 80\ \text{eV}$  und  $340\ \mu\text{eV}$  bei  $E_{e\perp} = 0\ \text{eV}$ ) detektiert werden. In der longitudinalen Richtung entspricht die Akzeptanz für die Elektronen, die einen longitudinalen Anfangsimpuls in Richtung des Detektors haben, dem gesamten Raumwinkel, wogegen von den Elektronen mit entgegengesetztem Anfangsimpuls diejenigen verloren gehen, für die  $E_{e\parallel} \geq 30\ \text{eV}$  ( $P_{e\parallel} \geq 1,5$  a.u.) gilt. Die longitudinale Impulsauflösung beträgt  $\Delta P_{e\parallel} \leq \pm 0,01$  a.u.

Die Akzeptanz sowie die Auflösung für die Ionen hängt von der Wurzel ihrer Masse ab. Für Protonen zum Beispiel, wie sie bei der Coulombexplosion von Wasserstoffmolekülen entstehen, beträgt die transversale Akzeptanz ungefähr  $P_{R\perp} \leq 6$  a.u. ( $E_{R\perp} \leq 270\ \text{meV}$ ) bei einer prinzipiell erreichbaren Auflösung von  $\Delta P_{R\perp} = \pm 0,05$  a.u. Abhängig von den Parametern des Überschallstrahls ist die Auflösung durch die interne Targettemperatur üblicherweise in einer transversalen Richtung auf  $\pm 0,10$  a.u. limitiert. Entlang des elektrischen Extraktionsfeldes können alle Ionen bis zu einem Impuls von  $P_{R\parallel} \leq 60$  a.u. detektiert werden. Für eine weiter ins Detail gehende Diskussion der die Auflösung eines Reaktionsmikroskops beeinflussenden Parameter wird auf die Literatur verwiesen [US03].

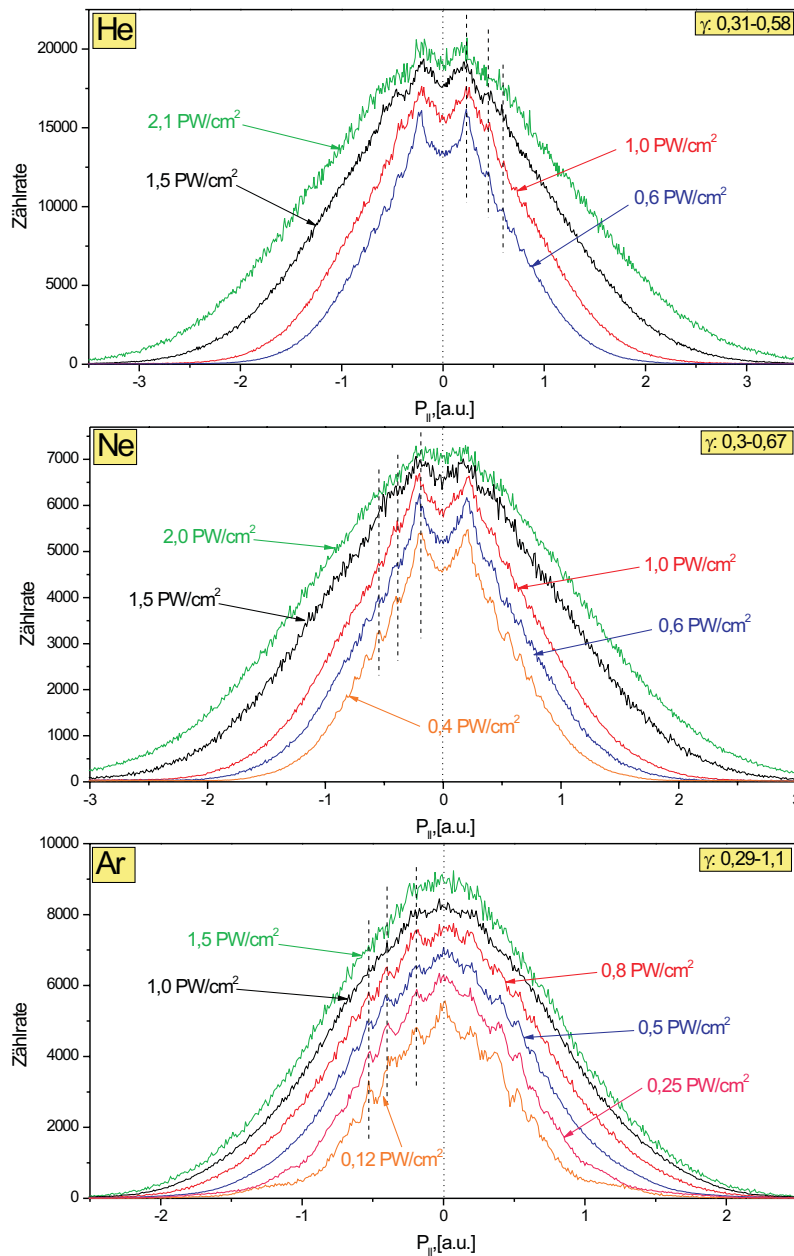
## 3.2 Resonanzstrukturen bei kleinen Elektronenenergien bei der Einfachionisation von Edelgasen im Tunnelionisationsbereich

In Kapitel 1.2 wurden zwei Beschreibungen der Einfachionisation von Atomen in intensiven Laserfeldern vorgestellt. Bei kleinen Intensitäten, bei denen die maximale elektrische Feldstärke des Laserfelds noch viel kleiner als diejenige ist, die vom Kernpotential auf der Bahn der gebundenen Elektronen erzeugt wird, lässt sich die Ionisation durch die Absorption von  $n$  Photonen beschreiben, wobei  $n\omega\hbar > I_p$  gelten muss (Multiphotonionisation). Wenn bei höheren Intensitäten das elektrische Feld der Lichtwelle das Kernpotential stark verändert, so dass das Elektron durch die dabei entstehende Barriere tunneln kann, wird die Ionisation durch das Modell der Tunnelionisation beschrieben. Unterschieden werden die Intensitätsbereiche, in denen die jeweiligen theoretischen Beschreibungen gute Ergebnisse erzielen, durch den Keldysh-Parameter  $\gamma = \sqrt{\frac{2\omega^2 I_p}{I}}$ . Bei  $\gamma \gg 1$  wird von Multiphotonionisation und bei  $\gamma \ll 1$  von Tunnelionisation gesprochen (s. Kapitel 1.2).

Im Bereich der Multiphotonenionisation wird aufgrund der Tatsache, dass das elektrische Feld des Laserlichts das Atompotential nicht dominiert, eine starke Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts und damit des Elektronenenergiespektrums von der atomaren Struktur erwartet. Tatsächlich zeigen eine Vielzahl von Messungen und theoretischen Arbeiten dieses erwartete Verhalten (Details s. Kapitel 1.2.1). Hingegen dominiert bei  $\gamma \ll 1$  das Laserfeld. Die Verschiebung des Ionisationspotentials und der hochangeregten Rydbergzustände im Multiphotonbild ist vergleichbar mit der Bindungsenergie. So beträgt z. B. das ponderomotive Potential, welches der Verschiebung des Ionisationspotentials entspricht, bei  $1 \text{ PW/cm}^2$  und einer Wellenlängen von  $800 \text{ nm}$  schon  $60 \text{ eV}$  ( $2,2 \text{ a.u.}$ ). Bei Argon mit einer Bindungsenergie von nur  $\approx 15,8 \text{ eV}$  ( $0,58 \text{ a.u.}$ ) entspricht diese Intensität einem Keldysh-Parameter von  $\gamma = 0,36$ . Aus diesem Beispiel wird deutlich, dass schon bei diesen Parametern die Beschreibung der Ionisation im Multiphotonbild an ihre Grenzen stößt. Die höher liegenden Zustände werden ebenfalls sehr stark verschoben, so dass sie zu den ursprünglichen atomaren Zuständen kaum noch Bezug haben. Daher wird ein Elektronenimpulsspektrum erwartet, das nur von den vom Feld übertragenen Impulsen abhängt, und in dem sich die atomare Struktur nicht widerspiegelt (s. Kapitel 1.2.2).

In Abbildung 3.2 sind die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Elektronenimpulsverteilungen in Richtung der Laserpolarisation bei verschiedenen Intensitäten im Tunnelbereich für Helium, Neon und Argon gezeigt [RZS<sup>+</sup>04]. Auffällig ist, dass auch im Intensitätsbereich für die Tunnelionisation ( $\gamma < 1$ ) Strukturen in den Spektren bei

kleinen Impulsen auftreten. Diese Strukturen sind auch in den Gesamtenergiespektren der Elektronen zu sehen, und wiederholen sich im Abstand der Photonenenergie, was durch die gestrichelten Linien angedeutet wird (s. Abbildung 3.3 für Neon). Die Position dieser Peaks verschieben sich nicht als Funktion der Intensität und weisen bei unterschiedlichen Intensitäten eine wiederkehrende Unterstruktur von minde-



**Abbildung 3.2:** Die Abbildung zeigt die longitudinalen Elektronimpulsverteilungen für die Ein-fachionisation von Helium, Neon und Argon bei verschiedenen Intensitäten im Tunnelbereich für 23 fs Pulse bei einer Wellenlänge von 800 nm [RZS<sup>+</sup>04].



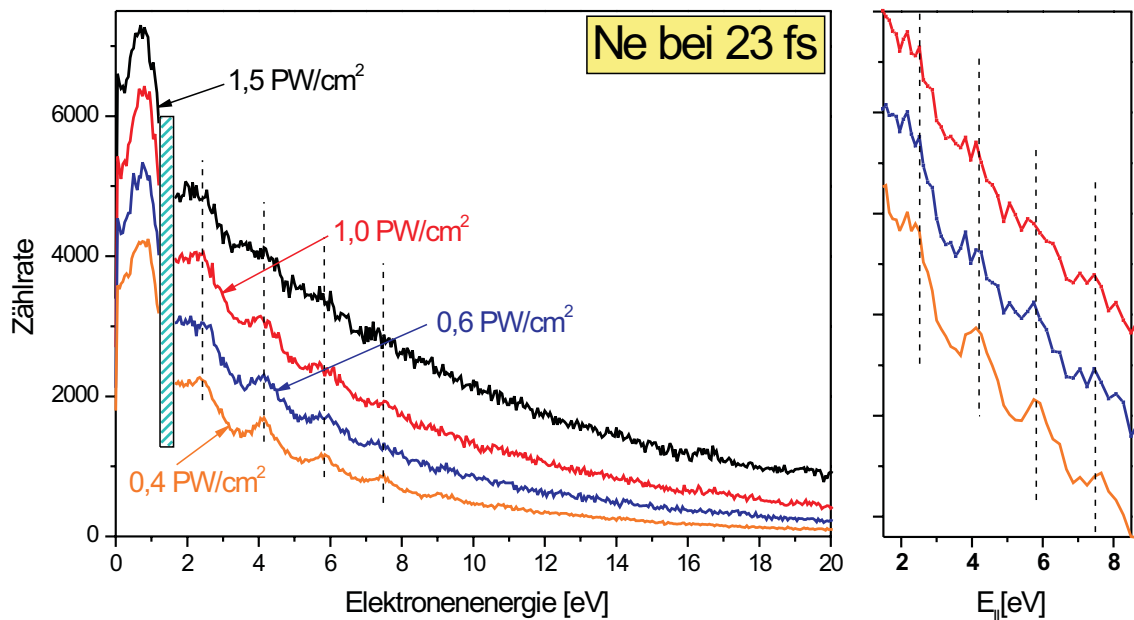
### 3.2. Resonanzstrukturen bei der Einfachionisation im Tunnelionisationsbereich

stens zwei Peaks auf, die sich in den verschiedenen ATI-Peaks wiederholt (s. Abb. 3.3 rechts).

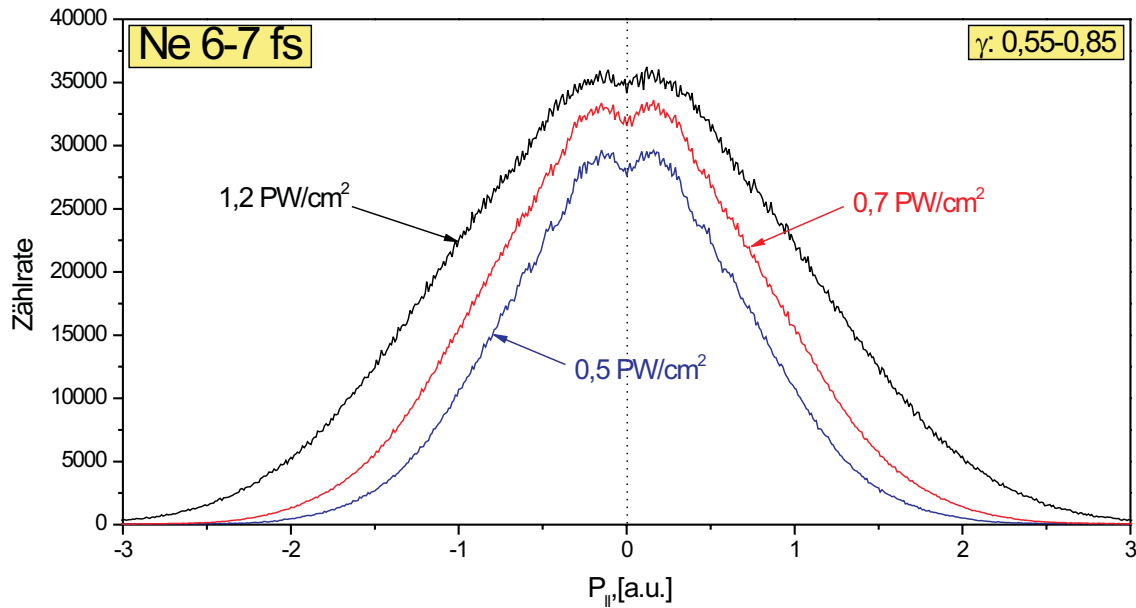
Die Aufspaltung der einzelnen ATI-Peaks in Unterstrukturen und die Eigenschaft, dass sich die Peaks nicht mit der ponderomotiven Energie verschieben, führt zur der Annahme, dass resonante Prozesse zu diesen Strukturen führen (s. Kapitel 1.2.1). Nicht resonante ATI-Peaks verschieben sich mit steigender Intensität aufgrund der Erhöhung des Ionisationspotentials durch das Laserfeld (s. oben  $U_p = 60 \text{ eV}$  bei  $1 \text{ PW/cm}^2$ ) zu niedrigeren Energien. Durch die zeitliche und räumliche Mittelung der Intensität gehen solche nicht resonanten Strukturen verloren, da schon die Änderung des ponderomotiven Potentials und damit der Intensität um nur 3% die Photonenenergie von 1,5 eV übersteigt.

Für die Entstehung von Überhöhungen im kontinuierlichen Energiespektrum aufgrund dessen, dass durch den AC-Starkeffekt ein Übergang vom Grundzustand zu einem hochangeregten Zustand in Resonanz gerät, sind zwei mögliche Prozesse bekannt (s. Kapitel 1.2.1):

- Bei dem einen findet die Ionisation „gleich im Anschluss“ an die resonante Anregung statt, so dass sich die Intensität während des gesamten Ionisationsprozesses nicht stark verändert hat. Daher ist die ponderomotiven Verschiebung



**Abbildung 3.3:** Die Abbildung zeigt das Gesamtelektronenenergiespektrum bei der Einfachionisation von Neon mit 25 fs Pulsen bei einer Wellenlänge von 800 nm. Der schraffierte Bereich kennzeichnet den Bereich, in dem das Reaktionsmikroskop keine Auflösung für die transversale Impulskomponente der Elektronen hat (s. Kapitel 3.1). Der rechte Teil der Abbildung zeigt einen Ausschnitt des longitudinalen Teils des Energiespektrums.



**Abbildung 3.4:** Die Abbildung zeigt die longitudinalen Impulsspektren für die Einfachionisation von Neon bei verschiedenen Intensitäten mit 6-7 fs Pulsen bei einer Zentralwellenlänge von 750 nm.

des Ionisationspotentials, bei der Ionisation, bei der die Rate durch die Resonanz erhöht wird, immer die Gleiche, wodurch die Elektronen, die über diesen Ionisationskanal entstanden sind, am Ende des Pulses immer dieselbe kinetische Energie haben. Sobald die Spitzenintensität die Intensität übersteigt, die notwendig ist, den Übergang zu einem angeregten Zustand in Resonanz zu bringen, kann die Resonanzbedingung an einem beliebigen Punkt in der zeitlichen und räumlichen Intensitätsverteilung des Fokus erfüllt sein [GFMM94].

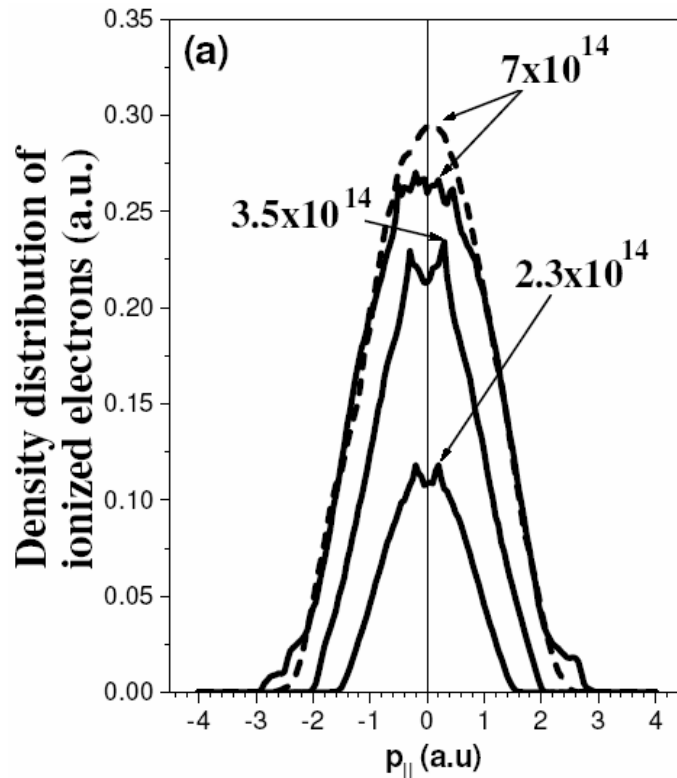
- Die zweite Möglichkeit ist, dass ein bei der Resonanzintensität einmal angeregter Rydbergzustand mit hoher Quantenzahl lange im Laserfeld überlebt. Dieser kann dann später im Verlauf des Pulses durch die Absorption von einem oder mehreren Photonen ionisiert werden. Da sich die hoch liegenden Rydbergzustände fast parallel mit dem Ionisationspotential als Funktion der Intensität verschieben, ist es nicht von Bedeutung bei welcher Intensität die Ionisation stattfindet, die Überhöhungen im Elektronenenergiespektrum bleiben erhalten [BM92] (s. auch Abb. 1.3).

Natürlich sind diese Überlegungen, die für Intensitäten galten, bei denen die Feldstärken viel kleiner als die atomaren Feldstärken sind, nicht ohne weiteres auf die Intensitäten im Tunnelbereich zu übertragen, bei denen die Verschiebung der angeregten Zwischenzustände ein Vielfaches des ursprünglichen Ionisationspotentials erreicht. Allerdings haben numerische Simulationen gezeigt, dass zum Teil angeregte

Zustände auch in solch starken Laserfeldern stabil sein können [Mul99b], [WVTM03], [Mul99a]. Diese Zustände werden vom Laserfeld selbst und dem Atompotential gebildet (light induced states). Ein Teil der Wellenfunktion, der durch die Barriere tunnelt, kann möglicherweise diese weit außerhalb des Atoms liegenden quasi-gebundenen Zustände bevölkern, was zu resonanzartigen Strukturen im Elektronenenergiespektrum führen kann [HBM97], [Mul99a].

Bei Pulsdauern von weniger als 10 fs sind die klassischen Umlaufzeiten dieser hochangeregten Zustände länger als die Laserpulse. Daher können bei so kurzen Pulsen diese Zustände nicht mehr effizient angeregt werden. Außerdem kann zwischen den einzelnen hochliegenden Zuständen aufgrund der Unschärfe der Photonenenergie bei so kurzen Pulsen nicht mehr unterschieden werden (bei einem 6 fs Gausspuls ist  $\Delta E_p = 0,3 \text{ eV}$ ). Die Folge ist, dass sich die Resonanzstrukturen im Spektrum verbreitern und schließlich ganz verschwinden. In den Spektren in Abbildung 3.4 ist dieses Verhalten für die Einfachionisation von Neon mit 6-7 fs Pulsen bei einer Zentralwellenlänge von 750 nm gezeigt. Die Strukturen verwischen und sind nur noch für kleine Intensitäten zu erkennen.

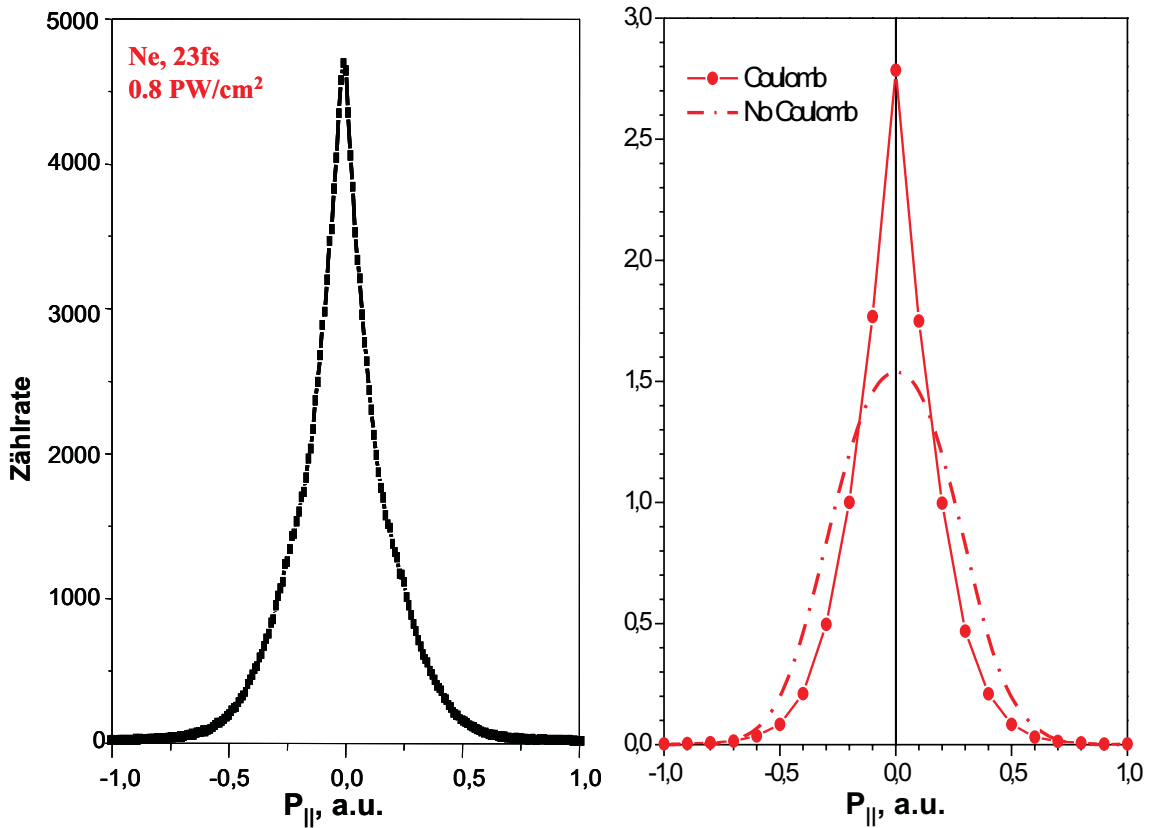
Ein weiteres interessantes und hier zum ersten Mal beobachtetes Phänomen ist das Minimum in der Impulsverteilung bei sehr kleinen Impulsen bei Helium und Neon (s. auch [MFS<sup>+</sup>00]). Semiklassische Rechnungen mit Wasserstoffatomen finden, wie in Abbildung 3.5 gezeigt, ebenfalls ein solches Minimum und erklären es als Folge der Coulombwechselwirkung des Elektron mit dem verbleibenden Ion nach dem Tunneln [CN02], [DAY<sup>+</sup>04]. Die Tunnelwahrscheinlichkeit ist in den Maxima der Lichtwelle am größten ( $\phi_0 = \pi/2 + n\pi$ ;  $n = 0, 1, \dots$ ). Dies führt nach Gleichung 1.10 zu kleinen Driftimpulsen. Nun werden die Elektronen, die bei der Phase  $\phi_0 = \pi/2 + n\pi$  tunneln gleichzeitig vom Laserfeld vielmals zum Ion zurückgetrieben und können an diesem streuen. Da diese Elektronen zum Zeitpunkt der Rückkehr zum Ion kleine Impulse von unter einem eV aufweisen, können sie im wesentlichen nur elastisch gestreut werden. Dabei werden sie aus ihrer ursprünglichen Richtung herausgestreut und bekommen einen zusätzlichen Driftimpuls. Aus Gleichung 1.14 folgt für den longitudinalen Impuls  $\dot{z} = 2\sqrt{U_p}(\cos\theta - 1)$ , wenn das Elektron bei  $\phi_0 = \pi/2$  getunnelt ist. Daraus folgt die Phase  $\phi_r = 0$ , zu der das Elektron gestreut wird, wobei die oszillatorische Bewegung des Elektrons im Feld vernachlässigt ist. Dieser longitudinale Impuls ist jedoch nur dann gleich Null, wenn der Streuwinkel  $\theta = 0^\circ$  beträgt, also das Elektron am Ion nicht abgelenkt wurde. Sobald elastische Streuung auftritt, werden die kleinen Impulse der Elektronen zu höheren verschoben, so dass ein Minimum bei kleinen Impulsen auftritt. Eines der theoretischen Modelle trifft ebenfalls eine Aussage zu den zu erwartenden transversalen Impulsverteilungen. In Abbildung 3.6 ist die experimentell beobachtete Transversalimpulsverteilung für die Einfachionisation bei  $0,8 \text{ PW/cm}^2$  von Neon gezeigt. Sie ist sehr schmal und weist



**Abbildung 3.5:** Die Abbildung zeigt die longitudinalen Impulsspektren der CTMC-T Rechnung (s. Text) für die Ionisation eines Wasserstoffatoms bei den verschiedenen Intensitäten für einen 5 Zyklenpuls ( $\approx 13$  fs) bei einer Wellenlänge von 800 nm [DAY<sup>+</sup>04]. Bei der gestrichelten Kurve wurde die Elektron-Ion-Wechselwirkung unterdrückt.

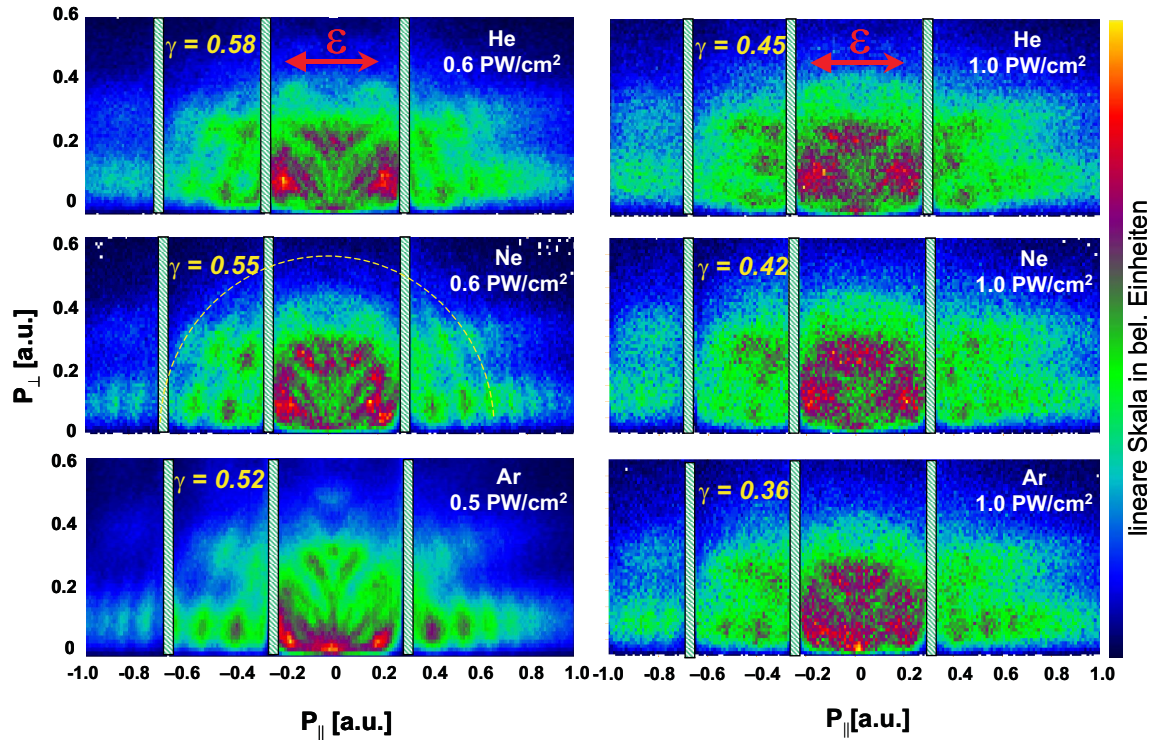
ein eindeutiges Maximum bei Null auf. In der Abbildung ist ebenfalls ein CTMC-T Ergebnis (Classical Trajectory Monte Carlo method including Tunneling effects) mit der Elektron-Ion-Wechselwirkung und ohne sie für die Ionisation eines Wasserstoffatoms ( $I = 3,5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> und  $\lambda = 800$  nm) abgebildet [DAY<sup>+</sup>04]. Ohne die Berücksichtigung der Coulombwechselwirkung ist das gemessene Spektrum nicht zu erklären. Mit der Elektron-Ion-Wechselwirkung wird die Messung sehr gut beschrieben. Auch das Minimum bei kleinen longitudinalen Impulsen und die Spitzen neben diesem Minimum werden gut beschrieben (s. Abb. 3.5).

Dieser Ansatz scheint also die generellen Eigenschaften der Impulsspektren von Helium und Neon im Intensitätsbereich der Tunnelionisation gut zu beschreiben, wenn von den Resonanzstrukturen, die in den klassischen Rechnungen natürlich nicht berücksichtigt werden, einmal abgesehen wird. Bei Argon allerdings versagt dieser Erklärungsansatz. Anstatt eines Minimums wird hier ein deutliches Maximum in der longitudinalen Impulsverteilung bei Null beobachtet (s. Abb. 3.2 unten). Entgegen der allgemeinen Erwartung zeigt in einem naiven Tunnelbild dies ohne Zweifel zum



**Abbildung 3.6:** Die linke Abbildung zeigt die beobachtete Transversalimpulsverteilung für die Einfachionisation von Neon bei  $0,8 \text{ PW/cm}^2$ . In der rechten Abbildung ist ein CTMC-T Ergebnis für die Ionisation eines Wasserstoffatoms bei  $I = 3,5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und einer Wellenlänge von  $\lambda = 800 \text{ nm}$  abgebildet (s. Text) [DAY<sup>+</sup>04].

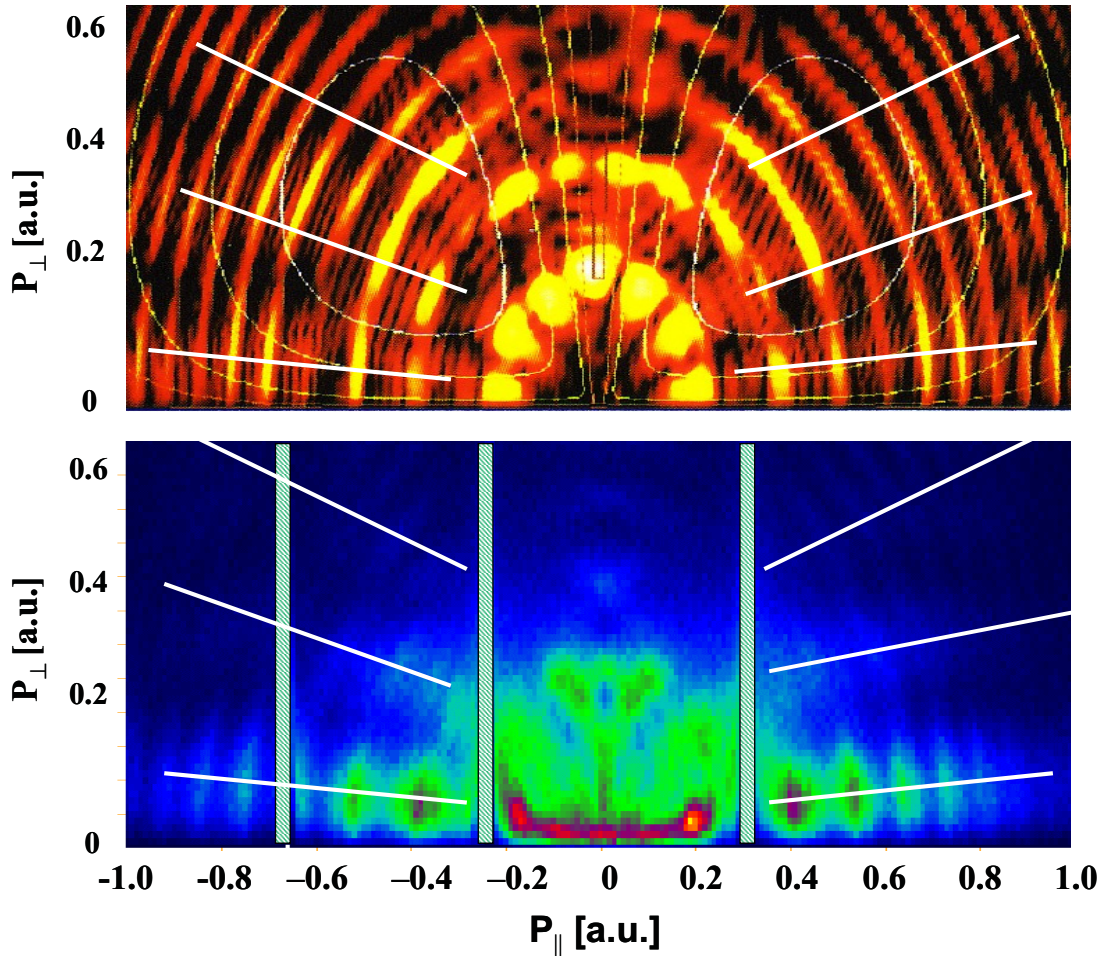
ersten Mal eine deutliche Abhängigkeit der Einfachionisation im Tunnelbereich von der Atomstruktur für die verschiedenen Targetgase. Im Tunnelschritt selbst ist eine solche Abhängigkeit zunächst nicht zu erwarten. Zwar gehen die Drehimpulse und Spin-Bahn-Kopplungen in die Tunnelrate ein [DK91], aber sie ändern die Impulsverteilungen nicht. Damit sollte innerhalb dieses Bildes der Unterschied im elastischen Streuquerschnitt für den Elektron-Ion-Stoß bei sehr kleinen Energien begründet liegen, wofür es allerdings keinerlei differentielle experimentelle Daten und unseres Wissens auch keine theoretischen Vorhersagen gibt. Von Elektron-Atom-Stößen ist wiederum bekannt, dass der elastische Streuquerschnitt bei Elektronenenergien von unter einem eV stark von der Polarisierbarkeit der Elektronenwolke des Atoms abhängt (Ramsauer Townsend Streuung). Der Streuquerschnitt von Argon liegt bei Elektronenenergien von  $\approx 300 \text{ meV}$  ungefähr eine Größenordnung unter demjenigen von Helium und eine bis zwei Größenordnungen unter demjenigen von Neon. Die Übertragung dieser Ergebnisse auf die Streuquerschnitte von einfach geladenen Io-



**Abbildung 3.7:** Die Abbildung zeigt die zweidimensionalen Impulsverteilungen (doppelt-differentielle Wirkungsquerschnitte) für die Einfachionisation von Helium, Neon und Argon mit 23 fs Pulsen. Die Richtung von  $\varepsilon$  zeigt die Laserpolarisationsrichtung an. Schraffierte Flächen markieren Bereiche in denen das Spektrometer keine transversale Auflösung hat (s. Kapitel 3.1). Die Farbkodierung entspricht der jeweiligen Anzahl der Ereignisse in einer linearen Skala von hoher Zählrate (rot) bis zu Null (blau).

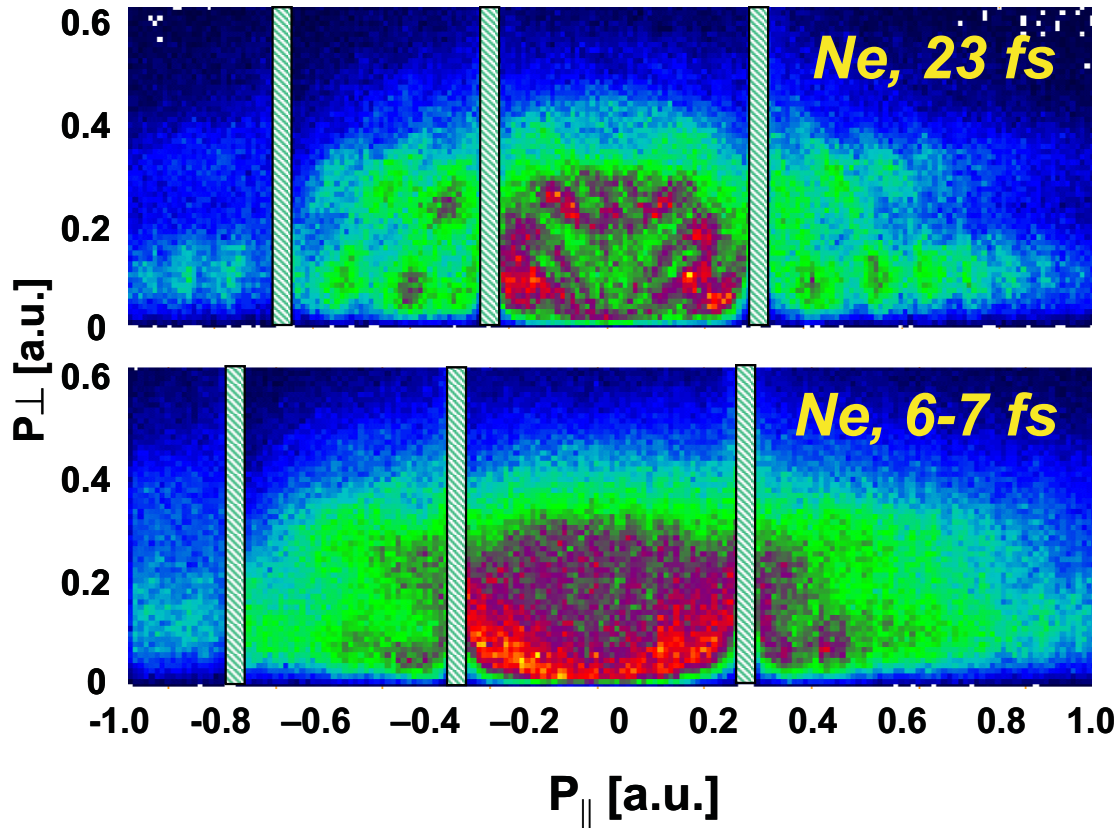
nen (Rutherford-Streuung) ist zwar nicht ohne weiteres möglich, könnte aber doch einen Hinweis auf eine mögliche Erklärung für die Unterschiede in den Impulsspektren bieten. Wenn sich nämlich der Wirkungsquerschnitt für die elastische Streuung an den entsprechenden einfach geladenen Ionen bei kleinen Elektronenenergien ebenfalls so stark unterscheiden würde wie bei den Atomen, würden Elektronen mit kleinen Impulsen bei Argon deutlich weniger gestreut und könnten deshalb kaum zusätzlichen Driftimpuls vom Feld aufnehmen. Ein Maximum bei kleinen Impulsen wäre die Folge, wie es bei Argon auch beobachtet wird.

In den zweidimensionalen Impulsspektren, die in Abbildung 3.7 für Helium, Neon und Argon bei verschiedenen Intensitäten gezeigt werden, sind deutlich mehr Informationen enthalten. Die ATI-Peaks im Energiespektrum liegen in dieser Darstellung als Orte gleicher Energie auf Halbkreisen um den Ursprung (gestrichelte Linie, zur Verdeutlichung). Im Gegensatz zur allgemeinen Erwartung sind die Spektren selbst bei hohen Intensitäten, tief im Tunnelbereich bis hin zu  $\gamma = 0, 4$ , stark strukturiert.



**Abbildung 3.8:** Diese Abbildung zeigt doppelt-differentielle Elektronen berechnet durch numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung für die Einfachionisation von atomarem Wasserstoff bei einer Intensität von  $0,13 \text{ PW/cm}^2$  mit  $26,6 \text{ fs}$  Pulsen [BP] (die Helligkeit gibt in einer linearen Skala die Wahrscheinlichkeit des entsprechenden Impulses des Elektrons an) im Vergleich zu den experimentellen Daten bei der Einfachionisation von Argon bei  $0,25 \text{ PW/cm}^2$  mit  $23 \text{ fs}$  Pulsen (Farbskala linear s. Abb. 3.7).

Deutlich sind die Unterschiede in der Winkelverteilung der Elektronen bei kleinen Energien für die verschiedenen Targetgase zu sehen. Für größere Impulse zeigen die Spektren dem gegenüber ein generelles, von der Atomsorte weitgehend unabhängiges Verhalten der emittierten Elektronen, mit ATI-Struktur und deutlichen Minima und Maxima in der Winkelverteilung. Derzeit sind die physikalischen Gründe für die beobachteten Strukturen völlig unklar. Wie aus Arbeiten bei niedrigeren Intensitäten wohl bekannt, spiegelt dort die Winkelverteilung von resonanten Beiträgen im Spektrum die Symmetrie des beteiligten Zwischenzustand wieder [WWHC03]. Dies führt im Allgemeinen zu einer Abhängigkeit der differentiellen Wirkungsquerschnitte von



**Abbildung 3.9:** Die Abbildung 3.9 zeigt ein zweidimensionales Spektrum für die Elektronenmission in der Einfachionisation von Neon mit 6-7 fs Pulsen ( $0,5 \text{ PW/cm}^2$ ) im direkten Vergleich zu einem solchen mit 23 fs Pulsen ( $0,6 \text{ PW/cm}^2$ ). Die Farbskala ist bei beiden Spektren linear (s. Abb. 3.7)

der atomaren Struktur, und hat einen großen Einfluss speziell auf das Verhalten der Elektronen mit sehr kleiner Energie. Da der resonante Anteil am Gesamtspektrum nur einen Teil ausmacht, der in einen nicht resonanten Hintergrund eingebettet ist (s. Abb. 3.2 und 3.3), ist für eine komplette Beschreibung der Daten die Analyse der durch das Laserfeld veränderten atomaren Struktur aber auch die Untersuchung der Anteile von resonanten und nicht resonanten Ionisationskanälen für die verschiedenen Intensitäten in der räumlichen und zeitlichen Verteilung des Fokus nötig. Auf diese Weise wurde theoretisch die Einfachionisation von Argon bis zu Intensitäten von  $10^{14} \text{ W/cm}^2$  im Rahmen einer SAE-Näherung (Single Active Electron) durch die numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung hervorragend beschrieben [WWHC03]. Allerdings ist die Erweiterung dieser Rechnung auf höhere Intensitäten wenn überhaupt nur mit einem erheblichen Mehraufwand an Rechenleistung möglich.

Abbildung 3.8 (oben) zeigt eine solche Rechnung für die Einfachionisation von



### 3.2. Resonanzstrukturen bei der Einfachionisation im Tunnelionisationsbereich

atomaren Wasserstoff bei einer festen Intensität von  $0,13 \text{ PW/cm}^2$  mit  $26,6 \text{ fs}$  Pulsen [BP] im Vergleich zu einer Argon-Messung bei  $0,25 \text{ PW/cm}^2$  mit  $23 \text{ fs}$  Pulsen (unten). Die Keldysh-Parameter sind mit  $\gamma = 0,93$  für die Simulation und  $\gamma = 0,69$  für die experimentellen Daten leider verschieden, weshalb die Spektren nur bedingt vergleichbar sind. Auffällig ist, dass die Strukturen in der Winkelverteilung bei großen Impulsen und die ATI-Ringstrukturen qualitativ gut wiedergegeben werden. Allerdings sind die berechneten ATI-Strukturen wesentlich deutlicher, was zum einem darin begründet liegen könnte, dass die Rechnung bei einem größerem Keldysh-Parameter durchgeführt wurde, zum anderen wird zur Zeit noch nicht über die verschiedenen Intensitäten im Laserfokus gemittelt. Wie aus der bisherigen Diskussion nicht anders zu erwarten stimmen die Spektren bei kleinen Elektronenenergien nicht überein, da sich dort die Abhängigkeit des differentiellen Wirkungsquerschnitts vom atomaren Potential widerspiegelt, und dieses für das Wasserstoffion und das Argonion natürlich unterschiedlich ist.

Bei der Ionisation mit kurzen Pulsen werden auch in den doppelt-differentiellen Daten, wie schon in Abbildung 3.4 für einfach-differentielle Resultate gezeigt, die Strukturen undeutlicher. In Abbildung 3.9 ist ein zweidimensionales Spektrum für die Einfachionisation von Neon mit  $6\text{-}7 \text{ fs}$  Pulsen im direkten Vergleich mit einem solchen für  $23 \text{ fs}$  Pulse zu sehen. Die ATI-Ringstrukturen sind kaum noch zu erkennen und die elementspezifischen Strukturen bei kleinen Impulsen sind weitgehend verwaschen.

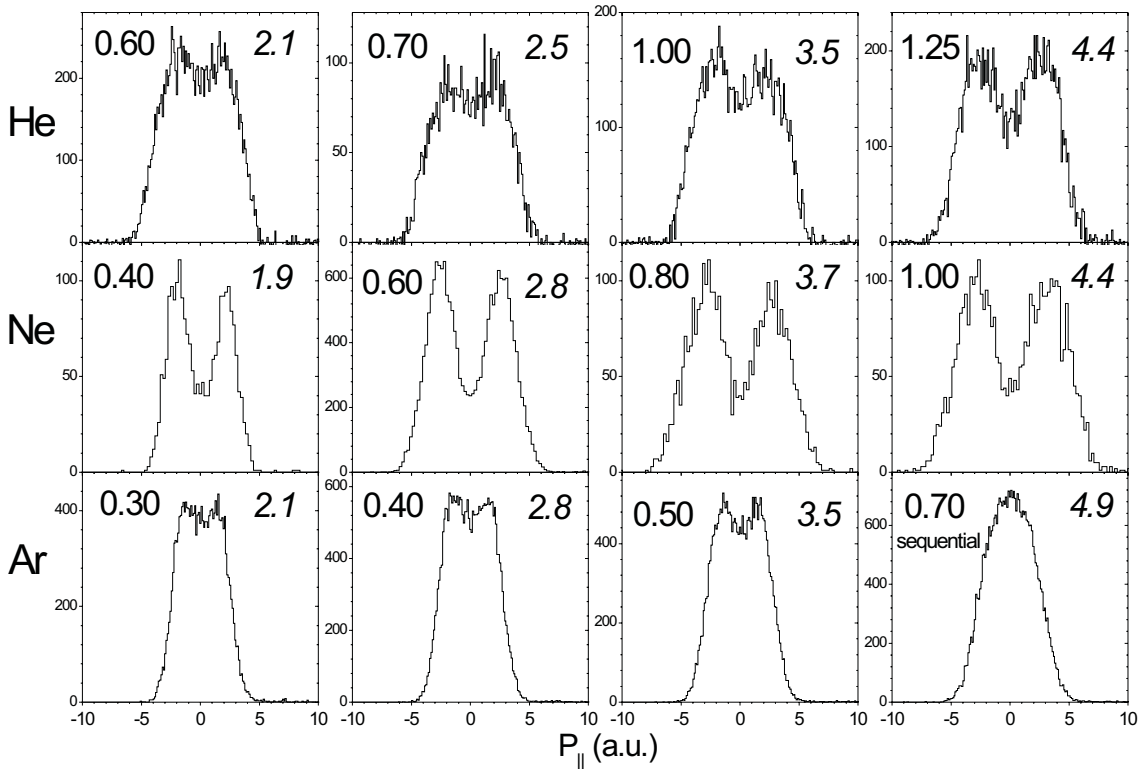
Aus den gewonnenen Erkenntnissen wird überdeutlich, dass quantenmechanische Effekte bei den beobachteten Ergebnissen auch bei diesen hohen Intensitäten eine wichtige Rolle spielen, und die Impuls- bzw. Elektronenenergieverteilungen nicht nur durch die Aufnahme des klassischen Driftimpulses nach dem Tunnelprozess beschrieben werden können.

### 3.3 Die Abhängigkeit der nichtsequentiellen Doppelionisation von der atomaren Struktur bei verschiedenen Edelgasen

Wie in Kapitel 1.3 beschrieben, ist der dominante Mechanismus, der zur nichtsequentiellen Doppelionisation führt, die Streuung des zuerst durch Tunnelionisation emittierten, und durch das Laserfeld zurückgetriebenen Elektrons an dem bereits einfach ionisierten Mutterion. Diese „Rückstreuung“ findet, wie ebenfalls bereits beschrieben, bevorzugt bei Phasen des Laserfeldes statt, in denen die elektrische Feldstärke klein ist (s. Kapitel 1.2.3). Das durch einen dabei möglichen (e,2e)-Stoß erzeugte doppelt geladene Ion wird durch das Feld auf Driftimpulse ungleich Null beschleunigt. Gemäß Gleichung 1.2 liegt das klassisch erreichbare Maximum des Ionendriftimpuls für ein zweifach geladenes Ion in Polarisationsrichtung bei  $p_{\parallel} = 4\sqrt{U_p}$ , wenn die Rückstreuung bei einem Nulldurchgang des elektrischen Feldes stattgefunden hat. Da das rückstreuende Elektron, zumindest in einem klassischen Bild, eine genügend hohe Energie haben muss, um die Bindungsenergie für die Doppelionisation durch direkte Stoßionisation zu überwinden, können bei den hier untersuchten Intensitäten nur Rückstreuphasen in der Nähe eines Nulldurchgangs beitragen, und entsprechend sollte ein stark ausgeprägtes Minimum bei  $p_{\parallel} = 0$  in der Verteilung der Ionenimpulse entlang der Polarisationsachse des Lasers beobachtet werden (s. Abb. 1.7). Dies wurde bei Messungen an Neon klar bestätigt [MFS<sup>+</sup>00]. Bei Helium [WWS<sup>+</sup>00a] ist dieses Minimum jedoch bei weitem nicht so ausgeprägt und bei Argon verschwindet es nahezu vollständig [WWS<sup>+</sup>00b, FMF<sup>+</sup>01].

Diese unterschiedlichen experimentellen Befunde für verschiedene Targetgase sind auf den ersten Blick sehr überraschend, da die bisher ausschließlich beobachteten Kniestrukturen in den Ionenraten aufgrund nichtsequentieller Beiträge für die verschiedenen Atome sehr ähnlich sind, und deswegen bisher davon ausgegangen wurde, dass bei der Ionisation bei so hohen elektrischen Feldern die Abhängigkeit von der atomaren Struktur zu vernachlässigen sei. Ein vorgeschlagener Mechanismus, durch den das Minimum in den Impulsspektren „aufgefüllt“ werden könnte, und der die Idee der Rückstreuung beinhaltet, ist die schon in Kapitel 1.4.1 erwähnte „RESI“ (Recollision-Excitation plus Subsequent field Ionization). Dabei wird bei der Rekollision des getunnelten Elektrons das Ion zunächst angeregt und nicht sofort ionisiert. Die anschließende Tunnel-/Feldionisation des zweiten Elektrons findet wiederum bevorzugt bei einem Maximum des elektrischen Feldes statt. Der resultierende longitudinale Driftimpuls ist daher bei diesem Mechanismus deutlich kleiner, wodurch das Minimum bei kleinen Longitudinalimpulsen aufgefüllt werden kann. Um die Bedeutung dieses Mechanismus’ bei der nichtsequentielle Doppelionisation für die

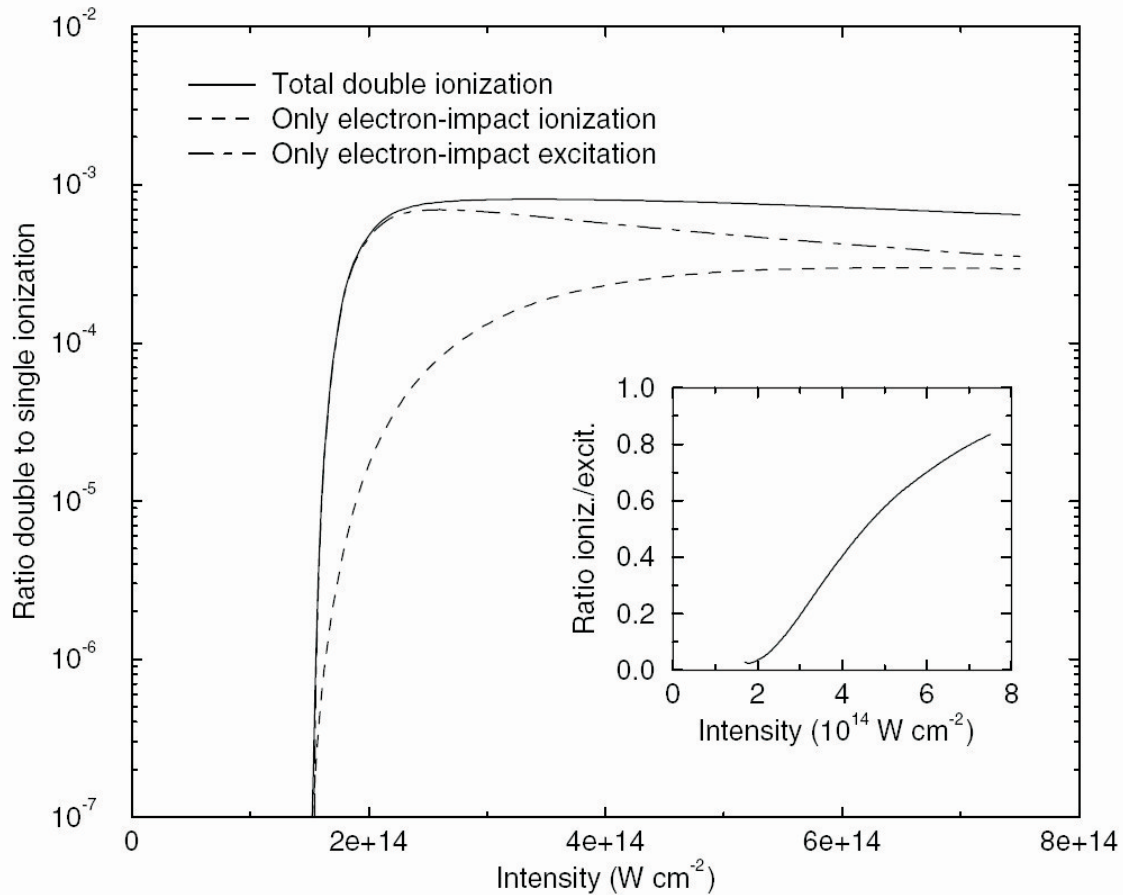
### 3.3. Atomstrukturabhängigkeit der nichtsequentiellen Doppelionisation



**Abbildung 3.10:** Die Abbildung zeigt eine Auswahl der im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Ionenimpulsspektren parallel zur Laserpolarisation für die Doppelionisation von Helium, Neon und Argon. Die Zahl in der linken oberen Ecke (nichtkursiv) gibt die Intensität in  $\text{PW}/\text{cm}^2$  an, bei der das jeweilige Spektrum aufgenommen wurde, die in der rechten oberen Ecke (kursiv) das Verhältnis der Maximalenergie des rückstreuenden Elektrons zum Ionisationspotential des einfach geladenen Ions ( $3.17U_p/I_p^+$ ).

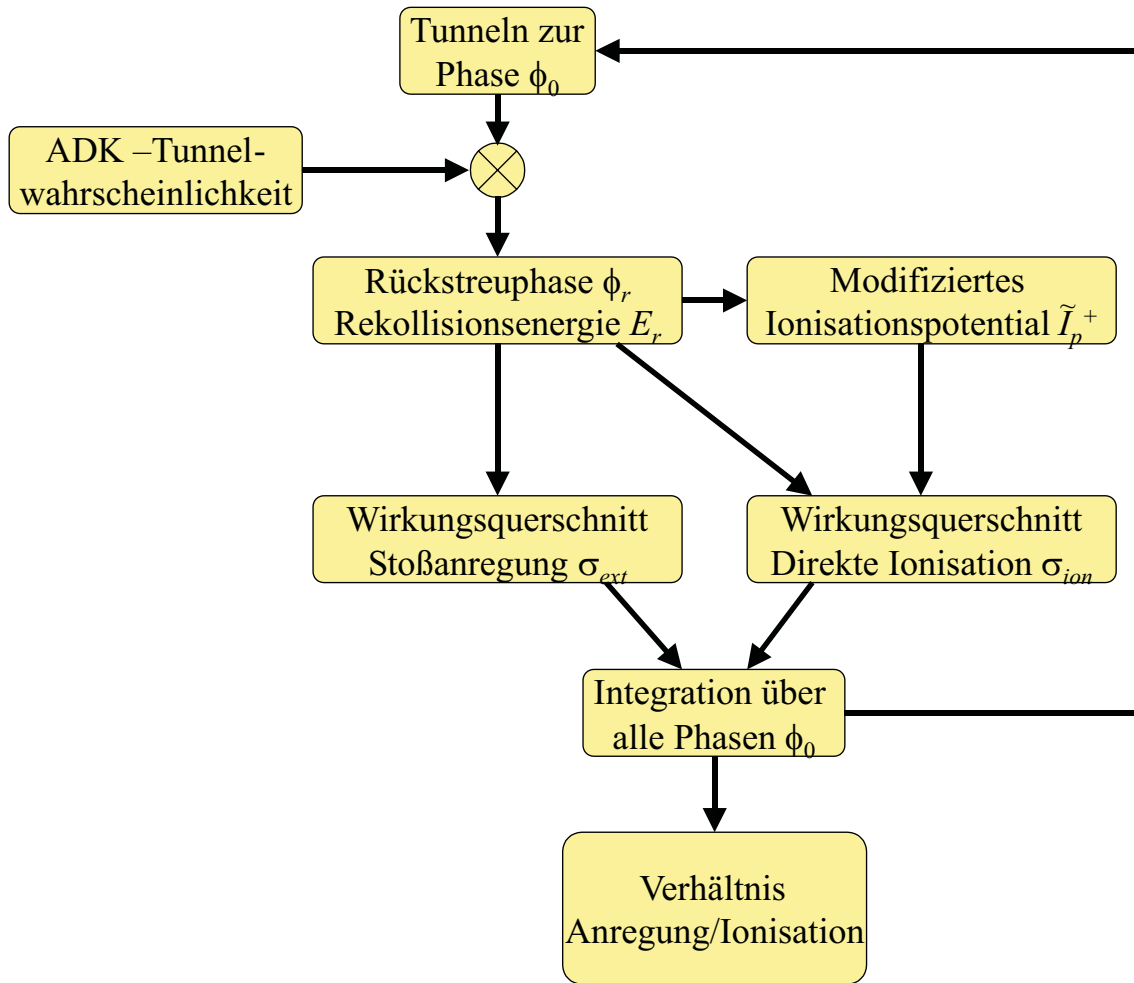
verschiedenen Elemente Helium, Argon und Neon näher zu untersuchen, wurde im Rahmen dieser Arbeit erstmalig eine systematische Studie über weite Bereiche der Intensität durchgeführt [JFZ<sup>+</sup>04].

Abbildung 3.10 zeigt eine Auswahl aufgenommener longitudinaler Impulsspektren der Ionen für die Doppelionisation von Helium, Neon und Argon. Die Zahlen in den linken oberen Ecken (nichtkursiv) bezeichnen die korrespondierenden Laserintensitäten in  $\text{PW}/\text{cm}^2$  und die Zahlen in den rechten oberen Ecken (kursiv) geben das Verhältnis der Maximalenergie des rückstreuenden Elektrons zum Ionisationspotential des jeweiligen einfach geladenen Ions an ( $3.17U_p/I_p^+$ ). Bei allen Intensitäten im nichtsequentiellen Bereich ist ein deutlicher Unterschied in den Impulsspektren für die verschiedenen Elemente zu erkennen. Bei Neon tritt über den gesamten dargestellten Intensitätsbereich eine stark ausgeprägte „Doppelstruktur“ auf. Bei Helium ist diese Struktur weniger ausgeprägt und wird erst bei höheren Intensitäten deutlicher. Bei Argon ist die Signatur des Rückstreumechanismus kaum noch erkennbar.



**Abbildung 3.11:** Die Abbildung zeigt das Verhältnis von Doppel- zu Einfachionisation von Helium als Funktion der Intensität. Des weiteren, ist der Anteil der direkten Stoßionisation bei der Rückstreuung wie auch der Anteil der Stoßanregung mit anschließender Feldionisation zu erkennen. Das eingefügte Diagramm zeigt das Verhältnis diese beiden Anteile als Funktion der Intensität [Har00].

Es liegt nahe, dass dem unterschiedlichen Verhalten Unterschiede in der atomaren Struktur der verschiedenen Edelgase zu Grunde liegen. Im Rahmen der oben vorgestellten Mechanismen der direkten Ionisation und der „RESI“, können diese Unterschiede auf die unterschiedlichen Querschnitte für die direkte Stoßionisation und die Stoßanregung für Helium, Neon und Argon zurückgeführt werden. Die Prägnanz der Ausprägung der „Doppelstruktur“ hängt also entscheidend von der Größe des Beitrages der „RESI“ zur Ionenausbeute und somit vom Verhältnis der Summe aller Anregungsquerschnitte zum Ionisationsquerschnitt im Elektronenstoß für die verschiedenen Elemente ab. Für Helium gab es diesbezüglich schon theoretische Untersuchungen [Har00], [HB00]. Das Ergebnis dieser Rechnungen ist in Abbildung 3.11 dargestellt [Har00]. Sie zeigt das Verhältnis von Doppel- zu Einfachionisation sowie die Anteile aus der direkten Stoßionisation und der Stoßanregung mit an-



**Abbildung 3.12:** Die Abbildung zeigt schematisch das Vorgehen bei der Berechnung des Verhältnisses von direkter Stoßionisation zu Stoßanregung mit anschließender Tunnel-/Feldionisation. Details s. Text.

schließender Feldionisation bei der Rekollision als Funktion der Intensität bei einer Wellenlänge von 780 nm. Die eingefügte Abbildung beschreibt das Verhältnis aus diesen beiden Anteilen als Funktion der Intensität. Dabei wurde nur Stoßanregung vom  $\text{He}^+$  Grundzustand in die Zustände 2s und 2p berücksichtigt. Das berechnete  $\text{He}^{2+}/\text{He}^+$  Verhältnis stimmt mit dem in [WSD<sup>+</sup>94] vorgestellten gemessenen Verhältnis ungefähr überein (Vergleich Abb. 1.6).

Um einen qualitativen und quantitativen Vergleich der experimentellen Ergebnisse für verschiedene Elemente durchführen zu können, wurden im Rahmen dieser Arbeit theoretische Modelle erarbeitet, mit dem Ziel die jeweiligen Anteile von direkter Stoßionisation und Stoßanregung nicht nur für Helium, sondern auch für Argon und Neon vorherzusagen.

Abbildung 3.12 zeigt schematisch das Vorgehen. Bei einer anfänglichen Phase  $\phi_0$  tunnelt ein Elektron mit einer ADK-Tunnelwahrscheinlichkeit nach Gleichung 1.8. Diese Phase wird deshalb mit der Tunnelwahrscheinlichkeit gewichtet. Mit Hilfe der Gleichungen aus Kapitel 1.1 und 1.2.3 wird die Rückstreuphase  $\phi_r$  und die dazugehörige Rückstreuenergie  $E_r$  berechnet. Da die Kollision in Anwesenheit des Feldes stattfindet, ist das Ionisationspotential in Abhängigkeit von der momentanen elektrischen Feldstärke bzw. der Rückstreuphase modifiziert. Dieses modifizierte Ionisationspotential  $\tilde{I}_p^+$  und die Rückstreuenergie gehen in die Berechnung für den Wirkungsquerschnitt für die direkte Stoßionisation  $\sigma_{ion}(E_r)$  ein. Im Wirkungsquerschnitt für die Stoßanregung  $\sigma_{ext}(E_r)$  wurde die feldinduzierte Starkverschiebung des Grundzustands und der anzuregenden Zustände nicht berücksichtigt. Nach der Integration über alle Anfangsphasen kann dann das Verhältnis  $R$  der Beiträge ( $Y_{ion}, Y_{ext}$ ) der jeweiligen Ionisationspfade bestimmt werden:

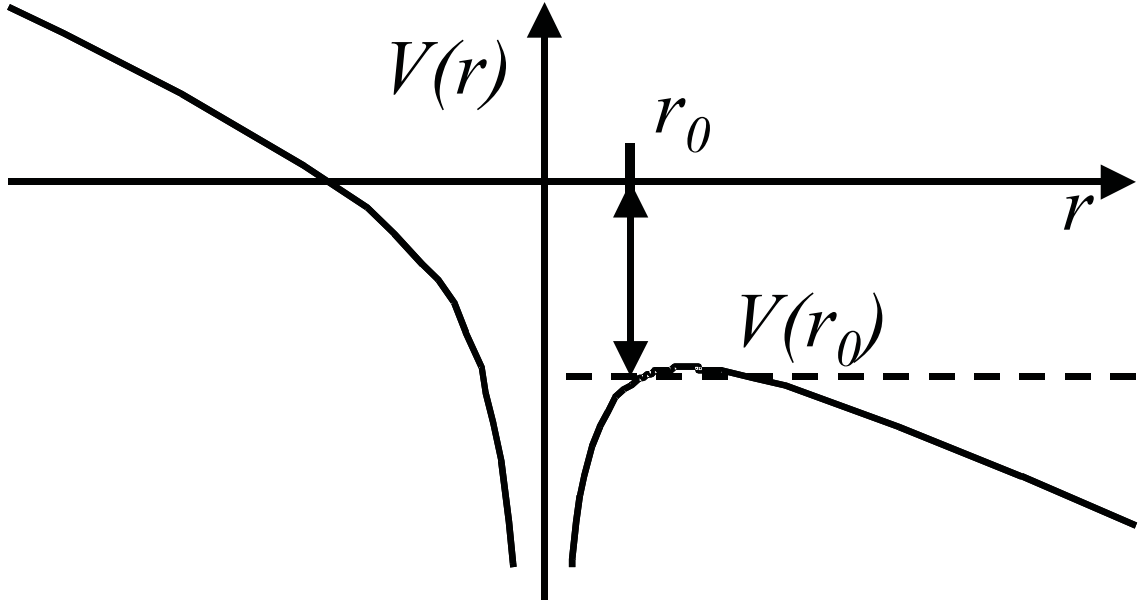
$$R = \frac{Y_{ion}}{Y_{ext}}, \quad Y_{ion,ext} = \int_{\pi/2}^{\pi} W_{ADK}(\phi_0) \sigma_{ion,exc}(E_r(\phi_0), \tilde{I}_p^+(\phi_0)) d\phi_0. \quad (3.1)$$

Dabei wird angenommen, dass der angeregte Zustand, welcher durch die Rekollision erzeugt werden kann, auch zu 100% tunnelionisiert wird, was im Intensitätsbereich, der nichtsequentiellen Doppelionisation sehr wahrscheinlich der Fall sein sollte. Des weiteren werden Effekte aufgrund der Pulsform vernachlässigt. Diese Näherung ist bei Pulsen der Länge 25 fs bei 800 nm Wellenlänge (10 Zyklen) gerade noch zulässig, da nahezu nur die Pulszyklen im Maximum der Einhüllenden zum Spektrum beitragen, und sich dort die Einhüllende mit der Zeit kaum ändert. Bei kürzeren Pulsen ist diese Näherung nicht mehr zulässig. Dabei ist es ausreichend von  $\pi/2 \leq \phi_0 < \pi$  zu integrieren, da bei einer Tunnelphase von  $0 \leq \phi_0 < \pi/2$  das Elektron nicht zum Ion zurückkehrt und der andere Halbzyklus ( $\pi \leq \phi_0 < 2\pi$ ) zu den selben Ergebnissen führt, davon abgesehen dass die Bewegung des Elektrons spiegelverkehrt ist. Nach dieser allgemeinen Beschreibung des generellen Vorgehens wird im Weiteren auf die einzelnen Schritte genauer eingegangen.

### Die Rückstreuphase/-energie

Die Rückstreuphase  $\phi_r$  also die Phase, zu der das Elektron zum ersten mal zum Ion (dem Ursprung) zurückkehrt, hängt über Gleichung 1.3 von der Tunnelphase  $\phi_0$  ab. Die Gleichung ist nur numerisch lösbar. Das Ergebnis kann aber bei Phasen  $90^\circ < \phi_0 < 180^\circ$  näherungsweise durch ein Polynom 3. Grades ausgedrückt werden:

$$\begin{aligned} \phi_r &= 450 - P_1(\phi_0 - 90^\circ)^{1/2} + P_3(\phi_0 - 90^\circ)^{3/2} & (3.2) \\ P_1 &= 24,678 \pm 0,036 \\ P_3 &= -0,03934 \pm 0.00064. \end{aligned}$$



**Abbildung 3.13:** Die Abbildung verdeutlicht, wie das Ionisationspotential durch ein externes elektrische Feld verkleinert wird.

Diese Näherung erleichtert die Berechnung der Rückstreuphasen und Energien sehr, da die numerische Integration entfällt. Die Rückstreuenergie folgt mit  $2E_r = p_r^2$  aus Gleichung 1.2:

$$E_r = 2U_p(\cos^2 \phi_r - 2 \cos \phi_r \cos \phi_0 + \cos^2 \phi_0). \quad (3.3)$$

### Das modifizierte Ionisationspotential

Da die Rekollision in Anwesenheit des elektrischen Feldes der Lasers stattfindet, ist das effektive Ionisationspotential  $\tilde{I}_p^+$  niedriger als das ungestörte  $I_p^+$ . Dabei wird das zur Rückstreuphase  $\phi_r$  vorherrschende elektrische Feld als konstant während der Kollision angenommen. Der Sachverhalt ist in Abbildung 3.13 dargestellt. Durch das extern anliegende Laserfeld  $F(\phi_r)$  ändert sich das Atompotential zur Phase  $\phi_r$  zu

$$V(r, \phi_r) = -\left|\frac{Z}{r}\right| - F(\phi_r)r. \quad (3.4)$$

Das Maximum der Barriere liegt bei  $r_0(\phi_r) = \sqrt{Z/F(\phi_r)}$ . Es wird nun vereinfachend angenommen, dass das Ionisationspotential genau um  $V(r_0)$  reduziert wird. Damit ist das modifizierte Ionisationspotential durch

$$\begin{aligned} \tilde{I}_p^+(\phi_r) &= I_p^+ + V(r_0(\phi_r)) \\ \tilde{I}_p^+(\phi_r) &= I_p^+ - 2\sqrt{ZF(\phi_r)} \end{aligned} \quad (3.5)$$

gegeben. Da das zu ionisierende Elektron im einfach geladenem Ion im Fernfeld ein Potential der Ladung zwei erfährt, wird  $Z = 2$  angenommen. Mit  $F(\phi_r) = F_{max} \sin \phi_r$  folgt

$$\tilde{I}_p^+(\phi_r) = I_p^+ - 2\sqrt{2|F_{max} \sin \phi_r|}. \quad (3.6)$$

Das ponderomotive Potential, welches im Multiphotonbild das Ionisationspotential um  $U_p$  nach oben verschoben hat, spielt bei dem semiklassischen Tunnelbild keine Rolle. Der Tunnelprozess ist im Intensitätsbereich der Gültigkeit des Tunnelbildes so schnell, dass sich das elektrische Wechselfeld während des Tunnelvorgangs nicht ändert und so die zeitlich gemittelte Energie im Laserfeld ( $U_p$ ) keine für diesen Vorgang relevante Größe ist.

### Wirkungsquerschnitt für die direkte Stoßionisation

Eine noch heute häufig verwendete und auch quantitativ sehr gute Näherung für den Wirkungsquerschnitt für die Elektronstoßionisation von einem Zustand  $A^{z,q}$  ( $z$ -Anfangsladungszustand,  $q$ -elektronischer  $nl$ -Anfangszustand, von dem aus ionisiert wird) wurde vor ungefähr 35 Jahren aufgestellt [Lot68]:

$$\sigma_{ion}^{zq}(E_r) = 2,17 \sum_{q'} \xi^{zqq'} \left(\frac{1}{I_p}\right)^2 \frac{\ln(E_r/I_p^{zqq'})}{E_r/I_p^{zqq'}} \text{ au}. \quad (3.7)$$

Dabei bezeichnet  $I_p^{zqq'}$  die notwendige Minimalenergie, die benötigt wird, um von einem Zustand  $q$  zu einem Zustand  $q'$  zu ionisieren.  $\xi^{zqq'}$  gibt die Anzahl äquivalenter Elektronen in der  $nl$ -Schale an, von der aus ionisiert wird. In dieser Formel erhält allerdings der anfängliche Drehimpuls keine Berücksichtigung. Ein verbesserter Ausdruck für den Wirkungsquerschnitt der Elektronenstoßionisation vom Zustand  $A^{zq}$  zum Zustand  $A^{z+1,q'}$ , welcher den Effekt des Anfangsdrehimpuls beinhaltet, wurde in [BRM00] vorgestellt:

$$\sigma_{ion}^{zqq'}(E_r) = C_l \left(\frac{0.5}{I_p^{zqq'}}\right)^{2-\delta_l} \xi^{zqq'} b^{zqq'} \frac{\ln(E_r/I_p^{zqq'})}{E_r/I_p^{zqq'}} \text{ au} \quad (3.8)$$

$b^{zqq'}$  gibt das Verzweigungsverhältnis der einzelnen Unterzustände des Endzustandes  $q'$  an, während  $\xi^{zqq'}$  die Anzahl der äquivalenten Elektronen in den Unterzuständen des Anfangszustand bezeichnet. Die Koeffizienten  $C_l$  und  $\delta_l$  wurden durch die Anpassung der berechneten Wechselwirkungsquerschnitte an gemessene Wirkungsquerschnitte ermittelt.

Der totale Wirkungsquerschnitt für die Ionisation des einfach geladenen Ions ergibt sich bei  $z = 1$  aus der Summation über die möglichen Anfangszustände des einfach geladenen Ions und die Endzustände des zweifach geladenen Ions:

$$\sigma_{ion} = \sum_{q,q'} \sigma_{ion}^{qq'}(E_r). \quad (3.9)$$



### 3.3. Atomstrukturabhängigkeit der nichtsequentiellen Doppelionisation

Endzustand	l	$I_p/\text{a.u.}$	$\xi^{q'}$	$b^{q'}$	$C_l$	$\delta_l$
Helium						
$\text{He}^{2+}$	0	2,0	1	1	6,36	0,0471
Neon						
$\text{Ne}^{2+}(2s^22p^4)^3\text{p}$	1	1,51	5	3/5	7,72	0,0910
$\text{Ne}^{2+}(2s^22p^4)^1\text{D}$	1	1,63	5	1/3	7,72	0,0910
$\text{Ne}^{2+}(2s^22p^4)^1\text{s}$	1	1,76	5	1/15	7,72	0,0910
$\text{Ne}^{2+}(2s2p^5)^3\text{p}$	0	2,44	2	3/4	6,36	0,0471
$\text{Ne}^{2+}(2s2p^5)^3\text{p}$	0	2,83	2	1/4	6,36	0,0471
Argon						
$\text{Ar}^{2+}(3s^23p^4)^3\text{p}$	1	1,01	5	3/5	7,72	0,0910
$\text{Ar}^{2+}(3s^23p^4)^1\text{D}$	1	1,07	5	1/3	7,72	0,0910
$\text{Ar}^{2+}(3s^23p^4)^1\text{s}$	1	1,16	5	1/15	7,72	0,0910
$\text{Ar}^{2+}(3s3p^5)^3\text{p}$	0	1,53	2	3/4	6,36	0,0471
$\text{Ar}^{2+}(3s3p^5)^3\text{p}$	0	1,67	2	1/4	6,36	0,0471

**Tabelle 3.1:** Die Tabelle enthält alle zur Berechnung des Elektronstoßionisationsquerschnitts notwendigen Ionisationspotentiale  $I_p$ , Verzweigungsverhältnisse  $b^{q'}$  und andere notwendige Konstanten.

Bei der Auswertung dieser Formel wurde davon ausgegangen, dass der Anfangszustand der Grundzustand des einfach geladenen Ions ist. Damit entfällt die Summation über  $q$ . Des Weiteren wurde nur die Ionisationen von Elektronen aus der jeweils äußersten s und p-Schale betrachtet. Dies schränkt die Anzahl der möglichen Endzustände ein. Die für die Berechnung des totalen Wirkungsquerschnittes für die Elektronstoßionisation von Helium, Neon und Argon notwendigen Konstanten sind in Tabelle 3.1 zu finden. Der Ausdruck 3.8 für den Ionisationsquerschnitt gilt, wie schon oben erwähnt, nur für den feldfreien Fall. Da dem Atompotential ein intensives Laserfeld mit einer Feldstärke, die in der selben Größenordnung liegen kann wie die atomare Feldstärke, welche die äußeren Elektronen im Ion spüren, überlagert ist, muss sich dieses Feld auch auf die Wirkungsquerschnitte auswirken. Besonders bei kleinen Einschussenergien  $E_r$  wird ein unterschiedliches Schwellenverhalten mit und ohne externem Feld erwartet. Wie aus den Betrachtungen zur Modifikation des Ionisationspotentials (s. oben) folgt, wird die Ionisationsbarriere durch das Feld des Lasers  $F(\phi_r)$  verkleinert. Daraus folgt, dass die Schwelle bei der die Energie des rückstreuenden Elektrons noch ausreicht, um das Ion weiter zu ionisieren, im Vergleich zum feldfreien Fall zu kleineren Energien hin verschoben wird. So ist zu erwarten, dass eine Korrektur der Gleichung 3.8 besonders bei kleinen Intensitäten ( $E_r$  skaliert mit der Intensität) wichtig ist. Dabei ist es nicht möglich lediglich die Ionisationspotentiale  $I_p$  aus Tabelle 3.1 in Gl. 3.8 durch

$I_p \rightarrow \tilde{I}_p(\phi_r) = I_p - 2\sqrt{Z|F_{max} \sin \phi_r|}$  zu ersetzen. Das Skalierungsverhalten der resultierenden Gleichung wäre vollkommen unphysikalisch. Deswegen wurde hier ein anderer Weg beschritten.

Der erste Term  $\left(\frac{0.5}{I_p}\right)^2$  in Gleichung 3.8 ist derjenige Teil des Wirkungsquerschnittes, der proportional zur geometrischen Fläche  $A$  des Atoms ist.

$$I_p \propto \frac{1}{\langle R \rangle}; \quad A = \pi \langle R \rangle^2 \propto \frac{1}{I_p^2}; \quad (3.10)$$

Da sich die geometrische Fläche des Ions mit dem angelegten Feld nicht ändert, darf das Ionisationspotential an dieser Stelle nicht modifiziert werden. Wenn das modifizierte Ionisationspotential an den beiden Stellen des zweiten Terms von Gleichung 3.8  $\frac{\ln(E_r/I_p^{zqq'})}{E_r/I_p^{zqq'}}$ , der die kinematische Abhängigkeit des Ionisationsquerschnitts beschreibt, eingesetzt wird, sind die Querschnitte bei großen Einschussenergien  $E_r$  kleiner. Bei kleiner werdendem Ionisationspotential wird aber auch bei hohen Elektronenenergien  $E_r$  ein größerer Ionisationsquerschnitt erwartet. Um dieses Problem zu umgehen, darf das Ionisationspotential nur im Logarithmus ersetzt werden,

$$\frac{1}{I_p} \frac{\ln(E_r/I_p)}{E} \rightarrow \frac{1}{I_p} \frac{\ln(E_r/\tilde{I}_p)}{E}. \quad (3.11)$$

Allerdings ist nun das Verhalten an der Ionisationsschwelle schlecht. Daher ist es notwendig sich das Verhalten bei Elektronenenergien nahe der Ionisationsschwelle anzuschauen. Dabei wurde der Term  $\left(\frac{0.5}{I_p}\right)^{2-\delta_l}$  durch  $\left(\frac{0.5}{I_p}\right)^2$  genähert, da die Korrektur durch  $\delta_l$  klein ist.

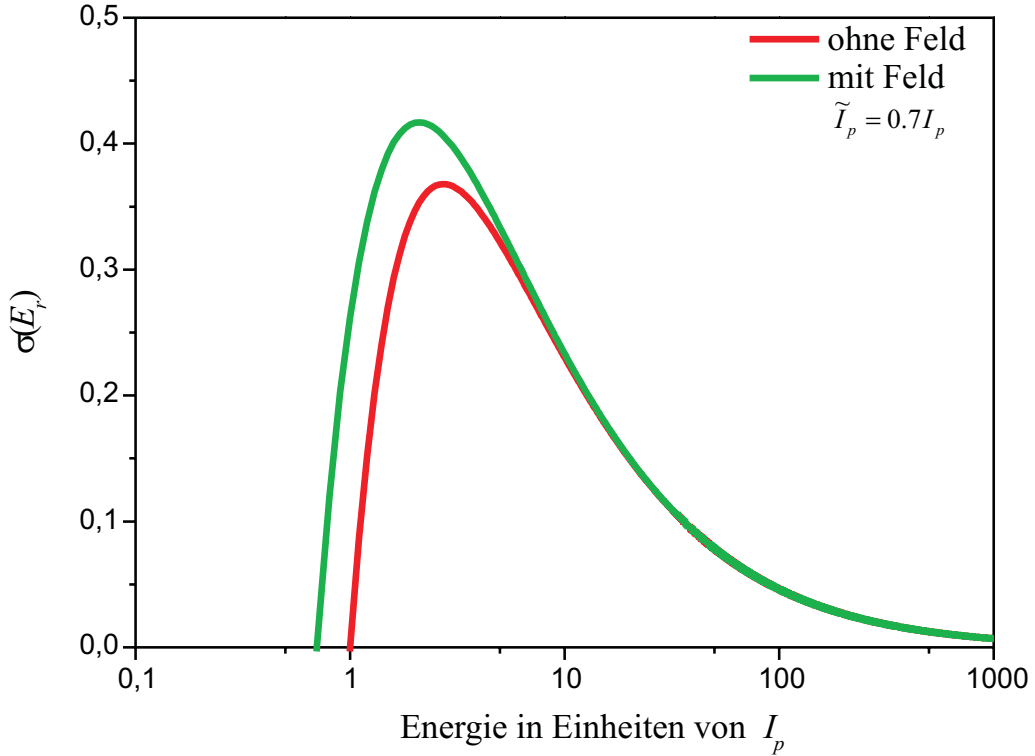
$$\sigma_{ion}(E_r) \propto \frac{1}{I_p} \frac{\ln(E_r/I_p)}{E_r} = \frac{1}{I_p} \frac{\ln\left(1 + \frac{E_r - I_p}{I_p}\right)}{E_r} \quad (3.12)$$

daraus folgt für  $\frac{E_r - I_p}{I_p} \ll 1$  unter Verwendung von  $\ln(1 + \kappa) \approx \kappa$  für  $\kappa \ll 1$ :

$$\begin{aligned} \sigma_{ion}(E_r) &\propto \frac{1}{I_p} \frac{\ln\left(1 + \frac{E_r - I_p}{I_p}\right)}{E_r} \approx \frac{1}{I_p} \frac{1}{E_r} \frac{E_r - I_p}{I_p} \\ \sigma_{ion}(E_r) &\propto \left(\frac{1}{I_p^2}\right) \frac{E_r - I_p}{E_r} = \left(\frac{1}{I_p^2}\right) \frac{E_{exc}}{E_r}. \end{aligned} \quad (3.13)$$

Der Term  $\frac{1}{I_p^2}$  stellt dabei wieder die geometrische Fläche des Ions dar, die nicht durch das erniedrigte Ionisationspotential  $\tilde{I}_p$  geändert werden darf, da sonst die Wirkungsquerschnitte bei kleinen Energien zu groß werden würden. Der zweite Term  $E_r - I_p$  ist die so genannte Überschussenergie des Elektrons  $E_{exc}$ , die nach der Ionisation übrig bleibt. Diese sollte sich ändern, wenn die Ionisationsschwelle durch das externe

### 3.3. Atomstrukturabhängigkeit der nichtsequentiellen Doppelionisation

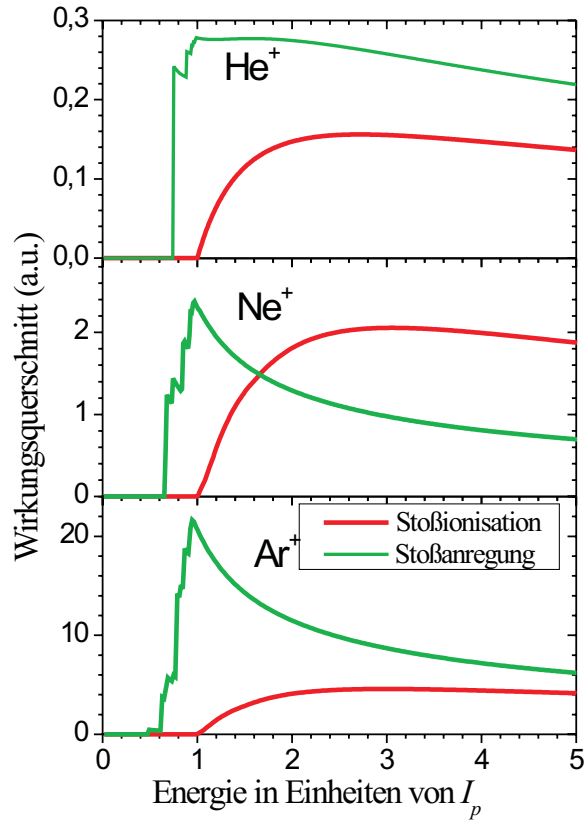


**Abbildung 3.14:** Vergleich der Wirkungsquerschnitte mit externem elektrischen Feld und ohne (Formeln s. Text). Das Verhalten bei hohen Elektronenenergien ist physikalisch sinnvoll, das heißt nicht kleiner als im unmodifizierten Fall. Die Schwelle, ab der die Elektronenenergie ausreicht, um stoßzuionisieren, ist mit externem Feld kleiner. Dabei wurde beispielhaft ein modifiziertes Ionisationspotential von  $\tilde{I}_p = 0.7I_p$  angenommen.

Feld gesenkt wurde. Aus diesen Überlegungen ergibt sich folgender Ausdruck für den Wirkungsquerschnitt für die Elektronstoßionisation in Anwesenheit eines statischen elektrischen Feldes:

$$\sigma_{ion}^{q'}(E_r) = C_l \left( \frac{0.5}{I_p^{q'}} \right)^{2-\delta_l} \xi^{q'} b^{q'} \frac{\ln \left( 1 + \frac{E_r - \tilde{I}_p^{q'}(\phi_r)}{I_p} \right)}{E_r / I_p^{q'}}. \quad (3.14)$$

Das Verhalten dieses Ausdruckes für große Elektronenenergien ist physikalisch sinnvoll und das Verhalten an der Ionisationsschwelle ist dem des ursprünglichen Ausdrucks ähnlich. Dabei ist die Schwelle zu kleineren Elektronenenergien verschoben, was aufgrund der Reduzierung der Ionisationsschwelle auch erwartet wird (s. Abb. 3.14). Dieser Ausdruck kann nur eine grobe Abschätzung für den Wirkungsquerschnitt darstellen. Allerdings gibt es seitens der Theorie keine verfügbaren Wirkungsquerschnitte für die Elektronenstoßionisation in Anwesenheit eines externen elektrischen Feldes dieser Stärke oder gar eines elektrischen Wechselfeldes.



**Abbildung 3.15:** Die Abbildung zeigt die summierten Wirkungsquerschnitte der Elektronenstoßanregung und der Elektronenstoßionisation als Funktion der Elektronenenergie. Dabei wurde die Reduktion des Ionisationspotentials aufgrund des extern vorhandenen elektrischen Feldes in diesem Graphen nicht berücksichtigt, da sich das Feld zur Zeit der Rückstreuung abhängig von der Tunnelphase, zu der das erste Elektron ins Kontinuum freigesetzt wird, und damit von der Elektronenenergie ändert.

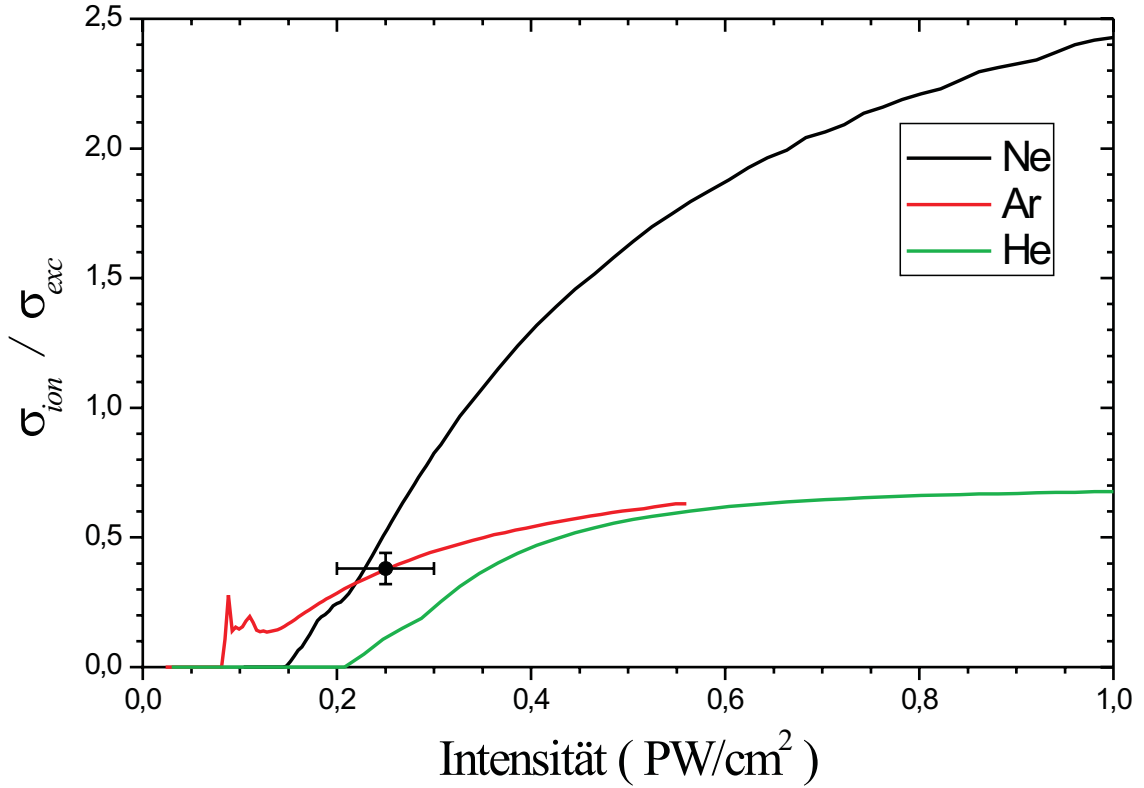
### Wirkungsquerschnitt für die Elektronenstoßanregung

Zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte für die Elektronenstoßanregung wurde für die Übergänge vom Zustand  $A^q$  zum Zustand  $A^{q'}$  die „van Regemorter“ Formel verwendet [Reg62]:

$$\sigma_{exc}^{qq'}(E_r) = \frac{2\pi^2 f^{qq'}}{\sqrt{3}E^{qq'}} \frac{G(x)}{x} \quad \text{mit } x = E_r/E^{qq'} \quad (3.15)$$

$$\sigma_{exc}(E_r) = \sum_{q,q'} \sigma_{exc}^{qq'}(E_r), \quad (3.16)$$

mit dem Gauntfaktor  $G(x) = 0,349 \ln x + 0,0988 + 0,455x^{-1}$  [FRB<sup>+</sup>97] (für Neon und Argon; Helium siehe unten), den Anregungsenergien  $E^{qq'}$  und den Oszillatorstärken  $f^{qq'}$  (Daten aus [VVF96]). Aus „closed coupling“-Rechnungen (CCC) ist



**Abbildung 3.16:** Die Abbildung zeigt das Verhältnis der Anteile zur Doppelionisationsrate von direkter Stoßionisation zu Stoßanregung mit anschließender Tunnel/-Feldionisation. Bei einer Intensität von  $0,58 \text{ PW/cm}^2$  wird das modifizierte Ionisationspotential  $\tilde{I}_p$  null, weshalb die Rechnung bei höheren Intensitäten für Argon nicht mehr gültig ist. Der Messpunkt kennzeichnet ein experimentell ermitteltes Verhältnis bei der Doppelionisation von Argon bei einer Intensität von  $0,25(5) \text{ PW/cm}^2$  von  $R_{exp} = 0,37(6)$  [FMF<sup>+</sup>01].

der Wirkungsquerschnitt für den Übergang von  $\text{He}^+(1)$  zu  $\text{He}^+(2s)$  und  $\text{He}^+(2p)$  in Abhängigkeit von der Stoßenergie bekannt [FRB<sup>+</sup>97]. Aus diesen Daten wurde durch Anpassung der Gl. 3.15 ein neuer Gauntfaktor für einfach geladenes Helium ermittelt:

$$G_{\text{He}^+}(x) = (P1 \ln x + P2 + P3x^{-1}) \quad (3.17)$$

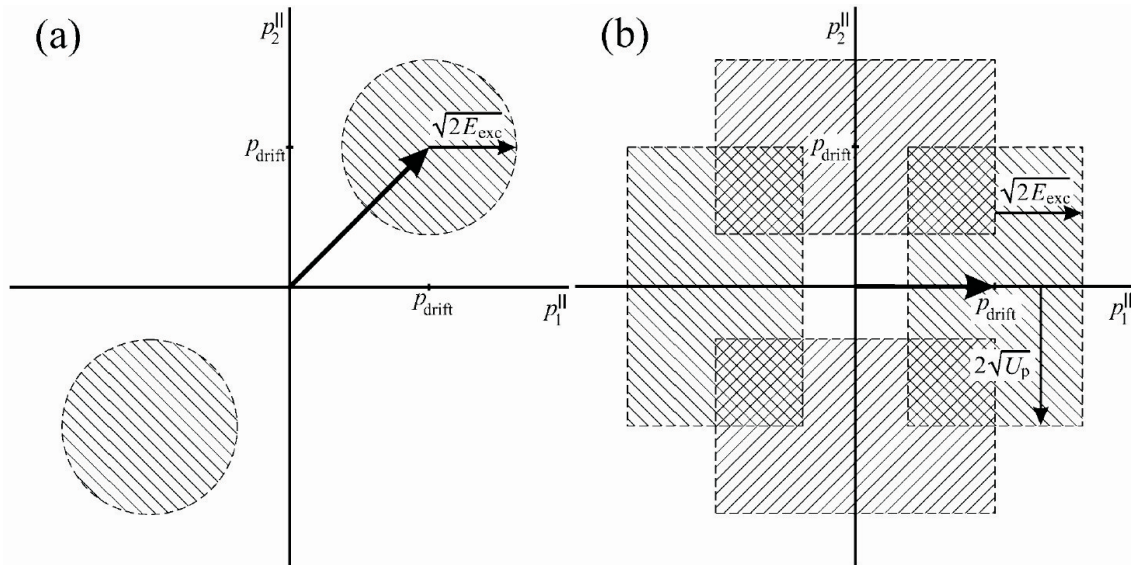
$$P1 = 0,37822 \pm 0,00964$$

$$P2 = -0,2118 \pm 0,01812$$

$$P3 = 0,32637 \pm 0,02154 .$$

Abbildung 3.15 fasst die summierten Wirkungsquerschnitte für die Stoßionisation und -anregung für Helium, Neon und Argon zusammen.

Nachdem nun analytische Ausdrücke für die Wirkungsquerschnitte vorliegen, muss über alle Tunnelphasen und davon abhängig über alle Rekollisionsenergien und effek-



**Abbildung 3.17:** Die Abbildung zeigt die kinematischen Grenzen für die Impulsverteilungen der Elektronen entlang der Laserpolarisation  $p_{1\parallel}$  und  $p_{2\parallel}$  für die direkte Stoßionisation und die Stoßanregung. Details siehe Text.

tiven Ionisationspotentiale integriert werden. Nach dieser Integration und der Wiederholung dieser Prozedur für verschiedene Intensitäten ist es möglich einen Verlauf der Verhältnisse der Anteile beider hier besprochenen Ionisationspfade in Abhängigkeit von der Intensität zu berechnen.

Aus den Ergebnissen, die in Abbildung 3.16 zusammengefasst sind, wird ersichtlich warum sich die longitudinalen Ionenimpulsspektren bei der Doppelionisation von verschiedenen Atomen aus Abbildung 3.10 so stark unterscheiden. In Abbildung 3.10 sind die Spektren, die ungefähr das selbe Verhältnis aus der maximalen Rückstreuenergie zum Ionisationspotential des einfach geladenen Ions haben, sind zur besseren Vergleichbarkeit untereinander angeordnet. Das Verhältnis der Anteile aus direkter Stoßionisation und Stoßanregung ist bei höheren Intensitäten bei Neon um einen Faktor vier bis fünf größer als bei Argon und Helium. Während bei Argon und Helium die Ionisation durch die Stoßanregung ungefähr zweimal wahrscheinlicher ist als die Ionisation durch die direkte Stoßionisation, ist das bei Neon umgekehrt. Hier liegt der Anteil der direkten Stoßionisation an der nichtsequentiellen Doppelionisation abhängig von der betrachteten Intensität bei zum Teil über 70%. Darum wird das „Tal“ bei kleinen Ionenimpulsen bei Argon und Helium aufgefüllt. Bei Neon hingegen entsteht durch den hohen Anteil an direkter Stoßionisation die ausgeprägte „Doppelstruktur“.

Der quantitative Vergleich dieser Rechnung mit experimentellen Daten alleine auf der Basis von longitudinalen Impulsverteilungen ist nicht eindeutig. Das Ionenim-

pulsspektrum, welches sich ja aus der Überlagerung der Impulsverteilungen beider Mechanismen ergibt, kann mit dem Wissen des Verhältnisses der beiden Anteile im Spektrum mit den erwarteten Impulsverteilungen für beide Ionisationspfade zwar angepaßt werden, wobei das Problem bei diesem Vorgehen jedoch darin liegt, dass die erwarteten Impulsverteilungen eigentlich nicht wirklich bekannt sind. Experimentell allerdings ist eine Separation der beiden Mechanismen anhand höher differentieller Daten, nämlich Elektronenkorrelationsspektren, wie in Abbildung 1.9 dargestellt, möglich. Dies wird im Folgenden kurz beschrieben werden.

#### **Klassische kinematische Grenzen der direkten Elektronenstoßionisation**

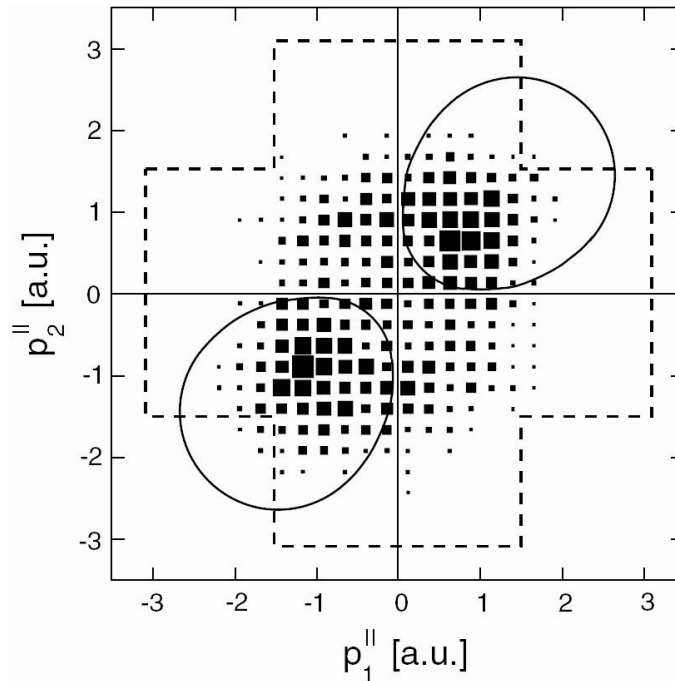
Wie in Kapitel 1.3 schon beschrieben, gilt für die Impulse der beiden freigesetzten Elektronen bei direkter Stoßionisation parallel zur Laserpolarisation folgende Ungleichung:

$$p_{1\parallel}^2 + p_{2\parallel}^2 \leq 2(E_r - I_p^+) = 2E_{exc}. \quad (3.18)$$

Sie kennzeichnet eine Fläche innerhalb eines Kreises in einem  $p_{1\parallel} - p_{2\parallel}$  Elektronenimpulskorrelationsdiagramm (s. Abb. 3.17a) [FMU00]). Dieser Kreis wird noch aufgrund der gleich großen Driftimpulse, welchen die beiden Elektronen nach der Stoßionisation abhängig von der Rückstreuphase  $\phi_r$  aufnehmen, in beide Richtungen entlang der Diagonalen verschoben. Da sowohl die Rückstreueenergie sowie die Rückstreuphase und damit der Versatz des Mittelpunkts des klassisch erlaubten kreisförmigen Bereichs als auch der Radius von der Tunnelphase abhängen, gehört zu jeder Phase  $\phi_0$  ein kinematisch erlaubter Bereich. Die Überlagerung aller kinematisch möglichen Bereiche werden von der durchgezogenen Linie in Abbildung 3.18 begrenzt.

#### **Klassische kinematische Grenzen der Elektronenstoßanregung**

Für die Stoßanregung sieht die Situation anders aus. Die beiden Elektronen haben in diesem Fall nicht mehr den gleichen Driftimpuls, da sie das Ion zu unterschiedlichen Phasen verlassen. Das rückgestreute Elektron hat nach der Kollision noch einen Impuls parallel zur Polarisationsrichtung von  $p_{1/2\parallel} \leq \sqrt{2E_{exc}} = \sqrt{2(E_r - E^{qq'})}$ . Nach der Kollision wird es abhängig von der Rückstreuphase noch Driftimpuls aufnehmen, was die Impulsverteilung vom Ursprung weg entlang der Koordinatenachsen verschiebt (nur ein Elektron nimmt diesen Driftimpuls auf, das andere ist lediglich angeregt aber noch gebunden). Die nun folgende Tunnelionisation ist in den Feldspitzen des elektrischen Feldes des Lasers am wahrscheinlichsten, weshalb der Impuls des zweiten Elektrons um Null herum verteilt sein wird (s. Gl. 1.2). Das klassisch erlaubte Maximum für den Driftimpuls des tunnelionisierten Elektrons liegt bei  $2\sqrt{U_p}$ . Zusammen mit den kinematischen Grenzen für das rückstreuende Elektron ergeben sich im Impulskorrelationsdiagramm Rechtecke, wie sie in Abbildung

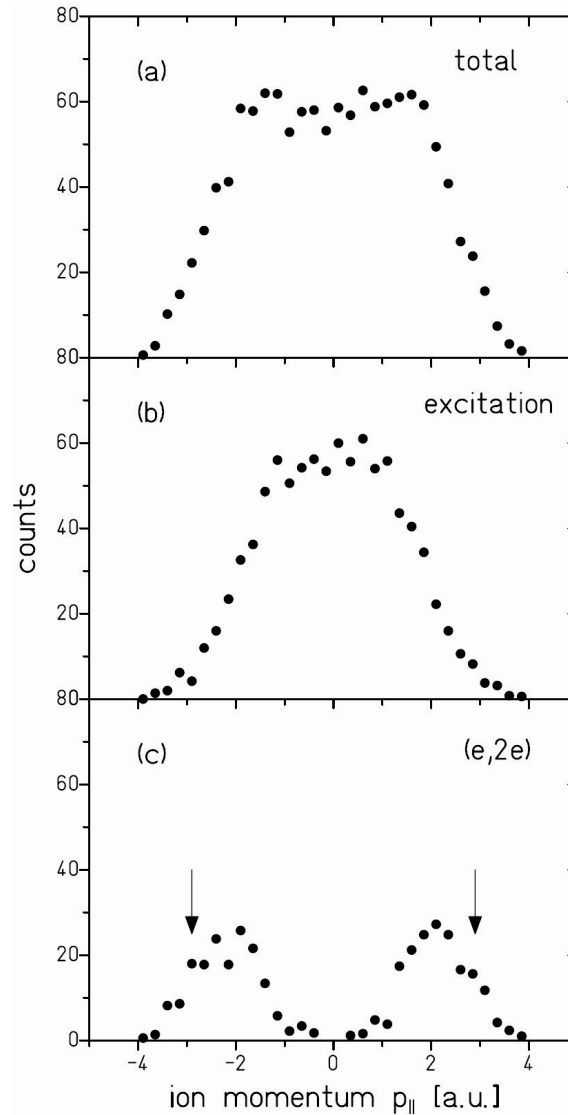


**Abbildung 3.18:** Die Abbildung zeigt das longitudinale Elektronenimpulskorrelationsspektrum für die Doppelionisation von Argon bei einer Intensität von  $0,25(5) \text{ PW/cm}^2$  [FMU00]. Die Anzahl der Ereignisse für eine bestimmte Impulskombination ist mit der Größe der Kästchen linear korreliert. Die für alle Tunnelphasen aufsummierte kinematisch erlaubten Bereiche für direkte Stoßionisation (Stoßanregung) liegen innerhalb der durchgezogenen (gestrichelten) Linie.

3.17 b) eingezeichnet sind. Die vier Bereiche folgen einerseits aus Symmetriegründen und andererseits daraus, dass die Elektronen 1 und 2 auf dem Detektor nicht unterscheidbar sind. Auch hier muss über die anfänglichen Tunnelphasen integriert werden, da sowohl Driftimpulse als auch die Rückstreuenergie davon abhängen. Außerdem müssen noch alle möglichen Anregungsenergien  $E^{qq'}$  berücksichtigt werden. Der letztendlich kinematisch erlaubte Bereich für die Stoßanregung mit anschließender Tunnelionisation ist in Abbildung 3.18 mit einer gestrichelten Linie umrissen. Ist nun die Intensität nicht zu hoch, überschreiten die beiden Bereiche für die direkte Stoßionisation ihre Quadranten nicht. Da die Impulsverteilung für Stoßanregung in allen vier Quadranten die Selbe ist, lässt sie sich in den Quadranten, in denen sich auch die Ereignisse der direkten Stoßionisation befinden, vom Gesamtspektrum abziehen. Dabei bleibt in diesen Quadranten nur die Impulsverteilung der direkten Stoßionisation übrig. Das Ergebnis dieser Prozedur plus der nachfolgenden Projektion der zweidimensionalen Verteilung auf die Winkelhalbierende der Quadranten II und III (Bezeichnung s. Kapitel 1.3) ist in Abbildung 3.19 zu sehen<sup>2</sup>. Aus diesen Spektren

<sup>2</sup>Die Projektion auf die Winkelhalbierende entspricht der Summation der Elektronenimpulse und damit den Ionenimpulsen





**Abbildung 3.19:** Die Abbildung a) zeigt das gesamte Ionenimpulsspektrum für die Doppelsonisation von Argon bei einer Intensität von  $0,25(5) \text{ PW/cm}^2$  [FMU00]. Abbildung b) zeigt den Anteil, den die Stoßanregung am Spektrum in Abbildung a) hat, während c) den Anteil der Stoßionisation zeigt. Die Pfeile zeigen den klassisch maximal erlaubten Driftimpuls von  $4\sqrt{U_p}$  für doppelt geladene Ionen.

lässt sich nun für Argon ein Verhältnis der Anteile von direkter Elektronenstoßionisation zu Elektronenstoßanregung mit anschließender Tunnel-/Feldionisation von  $R_{exp} = 0,37(6)$  bei einer Intensität von  $0,25(5) \text{ PW/cm}^2$  bestimmen. Dieser Datenpunkt ist im Diagramm 3.16 eingezeichnet und wird von den Modellrechnungen ohne Benutzung von Anpassungsparametern sehr gut vorhergesagt.

### 3.4 Korrelierte Elektronendynamik bei Mehrfachionisation verschiedener Edelgase

Nachdem im vorigen Kapitel die Anteile der verschiedenen Mechanismen, welche zur nichtsequenziellen Doppelionisation führen, qualitativ für die unterschiedlichen Edelgase und quantitativ für Argon untersucht wurden, sollen die gewonnenen Erkenntnisse allgemein auf die Mehrfachionisation von Neon und Argon erweitert werden, um die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Ionenspektren für  $\text{Ne}^{q+}$  (s. Abbildung 3.20) und  $\text{Ar}^{q+}$ ,  $q = 2 - 4$  (s. Abbildung 3.22) qualitativ zu erklären [RZF<sup>+</sup>04]. Im Gegensatz zur nichtsequenziellen Doppelionisation, bei der mit der direkten Stoßionisation und der Stoßanregung lediglich zwei Mechanismen mit stark unterschiedlichen Signaturen den Verlauf der Messdaten dominant bestimmen, und sie sich daher gut voneinander unterscheiden ließen, ist bei der Dreifach- oder auch Vierfachionisation auch eine sequentielle Abfolge verschiedener Mechanismen (Ionisationspfade) denkbar, welche weit weniger ausgeprägte spezifische Signaturen aufweisen können. Dabei ist anfänglich nicht klar, ob die einzelnen Ionisationspfade in den Impulsspektren noch zu trennen sein werden, oder aber die Strukturen durch die Integration über alle Wege zur multiplen Ionisation verschwinden. Für die Dreifachionisation zum Beispiel sind mit den in Kapitel 1.2.2, 1.2.3 und 1.4.1 vorgestellten Mechanismen Tunnelionisation, Rückstreuung und „RESI“ prinzipiell folgende Ionisationspfade denkbar:

1. Tunnelionisation → Rückstreuung → (e,3e)-Stoß; (0-3)
2. Tunnelionisation → Rückstreuung → (e,2e<sup>\*</sup>)-Stoß → Tunnelionisation; (0-3)
3. Tunnelionisation → Rückstreuung → (e,e<sup>\*</sup>e<sup>\*</sup>)-Stoß → Tunnelionisation → Tunnelionisation; (0-3)
4. Tunnelionisation → Tunnelionisation → Rückstreuung → (e,2e)-Stoß; (0-1-3)
5. Tunnelionisation → Tunnelionisation → Rückstreuung → (e,e<sup>\*</sup>)-Stoß → Tunnelionisation; (0-1-3)
6. Tunnelionisation → Rückstreuung → (e,2e)-Stoß → Tunnelionisation; (0-2-3)
7. Tunnelionisation → Rückstreuung → (e,e<sup>\*</sup>)-Stoß → Tunnelionisation → Tunnelionisation; (0-2-3)
8. Tunnelionisation → Rückstreuung → (e,e<sup>\*</sup>)-Stoß → Tunnelionisation → Rückstreuung → (e,2e)-Stoß; (0-3)

### 3.4. Korrelierte Elektronendynamik bei Mehrfachionisation verschiedener Edelgase

---

9. Tunnelionisation  $\rightarrow$  Rückstreuung  $\rightarrow$   $(e, e^*)$ -Stoß  $\rightarrow$  Tunnelionisation  $\rightarrow$  Rückstreuung  $\rightarrow$   $(e, e^*)$ -Stoß  $\rightarrow$  Tunnelionisation; (0-3)
10. Tunnelionisation  $\rightarrow$  Tunnelionisation  $\rightarrow$  Tunnelionisation; (0-1-2-3).

Dabei bezeichnet  $(e, ne)$  einen Elektronenstoß, bei dem  $n$  Elektronen nach dem Stoß emittiert werden und  $(e, ne^*)$  (bzw.  $(e, nee^*e^*)$ ) einen Elektronenstoß, bei dem ebenfalls  $n$  Elektronen nach dem Stoß emittiert, jedoch noch ein (bzw. zwei) Elektronen im verbleibenden Ion angeregt werden. Bei höher geladenen Endzuständen gibt es entsprechend mehr Ionisationspfade, so dass hier der Einfachheit halber zunächst nur die Dreifachionisation betrachtet wird. Mit den gewonnenen Erkenntnissen ist es dann möglich weitere allgemeine Aussagen zur Mehrfachionisation zu treffen.

Um sich zunächst dem Problem der Dreifachionisation zu nähern, ist es hilfreich sich mit den beiden extremen Beispielen (Pfad 1 und 10), die zu Ionisation führen können, zu beschäftigen. Der theoretisch am einfachsten zu beschreibende Weg zur Dreifachionisation, ist die Möglichkeit komplett sequentiell zu ionisieren (T-T-T), das heißt drei unabhängige Tunnel-/Feldionisationen finden bei jeweils erhöhtem Ionisationspotential des bereits ionisierten Atoms statt (auch bezeichnet durch 0-1-2-3). Die Impulsverteilungen für die einzelnen Tunnelionisationsschritte werden zumindest für kleine Impulse durch Gleichung 1.11 beschrieben und sind gaußförmig mit einem Maximum bei kleinen Impulsen, wenn von den in Kapitel 3.2 beschriebenen, kleinen Effekten abgesehen wird. Die sich schließlich ergebende Gesamtimpulsverteilung ist eine Faltung der Impulsverteilungen der einzelnen Ionisationsschritte. Daher liegt das Maximum ebenfalls bei kleinen Impulsen und nur die Breite der Verteilung vergrößert sich etwas, wobei sie aber noch relativ schmal ist. Dieser Weg zu Dreifach- und Vierfachionisation tritt, wie auch bei der Doppelionisation, bevorzugt bei hohen Intensitäten auf, da die Tunnelionisationsraten exponentiell ansteigen und damit bei höheren Intensitäten hauptsächlich zur Gesamtrate beitragen (s. Abbildung 3.22  $\text{Ar}^{3+}$  bei  $2 \text{ PW/cm}^2$ ).

Der andere Extremfall zur Mehrfachionisation ist die Rückstreuung des ersten getunnelten Elektron am verbleibenden Ion, wobei nun durch einen einzigen  $(e, 3e)$ -Stoß die restlichen Elektronen freigesetzt werden (Pfad 1 auch bezeichnet als (0-3)-Prozess). Da ein solcher Stoß bevorzugt im Minimum des elektrischen Feldes stattfindet (s. Kapitel 1.2.3), gewinnen die einzelnen Elektronen nach dem Stoß jeweils den Driftimpuls  $p_i(e_r) = 2\sqrt{U_p}$  (s. Gl. 1.10). Aufgrund von Impulserhaltung (Photonenimpulse sind mit je  $0,05$  a.u. zu vernachlässigen), muss das Ion die Summen der Impulse der Elektronen aufnehmen:

$$p_{ion}^{(3)} = - \sum_{i=1}^3 p_i(e_r) . \quad (3.19)$$

Damit beträgt die obere Grenze für den wahrscheinlichsten Impuls bei Freisetzung aller Elektronen in der Rekollision  $p_{max} = 2 \times 3 \sqrt{U_p}$  mit  $U_p = E_{max}^2 / 4\omega^2$  wobei  $E_{max}$  die Spitzenfeldstärke ( $E^2 \propto I$ ) und  $\omega$  die Laserfrequenz bezeichnen. Dieser Impuls ist in den Abbildungen 3.20-3.22 durch die blauen Pfeile markiert.

Im Allgemeinen wird eine Kombination aus sequentiell tunnelnden Elektronen ( $e_t$ ) und nichtsequentiell durch Elektronenstoß emittierten Elektronen zur 3-fachen Ionisation führen (Pfade 2-9; s. auch Kapitel 1.3) [FMU00]. Bei Mehrfachionisation gibt es entsprechend mehr Wege. Da die Tunnelionisation nur zu kleinen Driftimpulsen bei den Elektronen führt, wird der Ionenimpuls für ein  $n$ -fach geladenes Ion

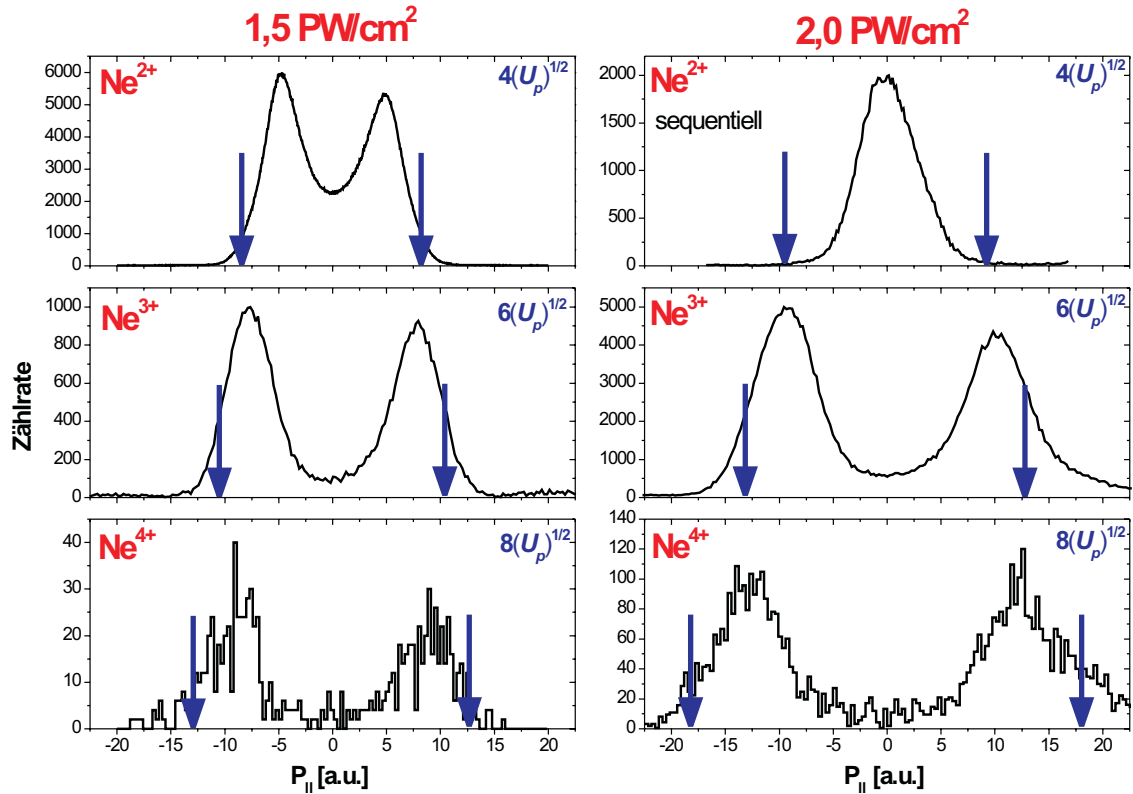
$$p_{ion}^{(n)} = - \sum_{i=1}^l p_i(e_t) - \sum_{j=1}^m p_j(e_r), \quad n = l + m \quad (3.20)$$

hauptsächlich durch den Beitrag der simultan durch den Rückstreuprozess erzeugten Elektronen ( $e_r$ ) bestimmt. Daher verringert sich, sobald ein Teil der Elektronen sequentiell ionisiert wird, die Breite der Ionenimpulsverteilung. Bei diesen Überlegungen wurde die zum Beispiel für Argon wichtige Möglichkeit bei der Rückstreuung auch anzuregen („RESI“) in der Art berücksichtigt, dass ja auch die sich an die Anregung anschließende Feldionisation des Ions als sequenziell zu bezeichnen ist. Bei der Diskussion der Argonmessergebnisse weiter unten wird noch genauer darauf eingegangen werden.

### Die Mehrfachionisation von Neon

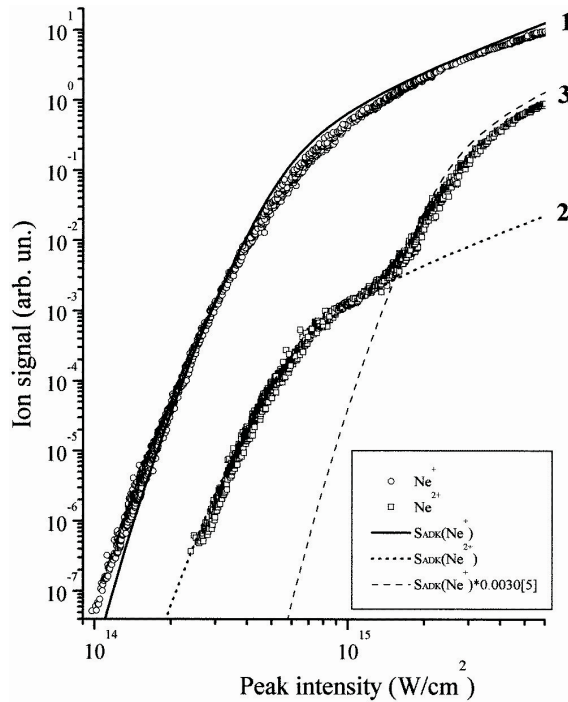
Abbildung 3.20 zeigt die longitudinalen Ionenimpulse für die Doppel-, Dreifach- und Vierfachionisation von Neon bei Intensitäten von 1,5 und 2,0 PW/cm<sup>2</sup>. Bei einer Intensität von 1,5 PW/cm<sup>2</sup> zeigen die Verteilungen von Ne<sup>2+</sup> bis Ne<sup>4+</sup> die charakteristische „Doppelstruktur“, welche die eindeutige Signatur für die Dominanz der direkten Stoßionisation ( $e,ne$ ) bei der nichtsequentielle Ionisation ist (s. Kapitel 1.3 und 3.3). Interessant ist auch, dass die Impulsverteilungen deutlich das klassische Maximum von  $p_{max} = 2n\sqrt{U_p}$  überschreiten. Solch hohen Impulse sind nur möglich, wenn alle Elektronen in einer nichtsequentiellen direkten Stoßionisation erzeugt werden, und diese ein Rückstoßimpuls auf das Ion in diejenige Richtung übertragen aus der das rückstreuende Elektron kam. Der selbe Effekt führt zu der Ausbildung des Plateau in den Elektronenimpuls- und Energiespektren bei der Einfachionisation (s. Kapitel 1.2.3). Dabei kann es, wie bei der Einfachionisation (s. Kapitel 1.2.3) einen Impuls bekommen, der größer ist als der maximale Driftimpuls von  $2\sqrt{U_p}$ . Der Anteil der Ereignisse, bei der das streuende Elektron am Ion zurückgestreut wird, ist allerdings gering, so dass niedrigere Impulse als  $p_{max} = 2n\sqrt{U_p}$  wahrscheinlicher sind.

### 3.4. Korrelierte Elektronendynamik bei Mehrfachionisation verschiedener Edelgase



**Abbildung 3.20:** Die Abbildung zeigt die longitudinalen Ionenimpulse für die Doppel-, Dreifach- und Vierfachionisation von Neon bei Intensitäten von 1,5 und 2,0 PW/cm<sup>2</sup> mit 25 fs Pulsen bei einer Wellenlänge von 800 nm.

Bei höheren Intensitäten (2.0 PW/cm<sup>2</sup>) werden die Ne<sup>2+</sup>-Ionen sequentiell erzeugt, so dass die Impulsverteilung gaußförmig ist mit einem Maximum bei Null. Die Impulsverteilungen von Ne<sup>3+</sup> und Ne<sup>4+</sup> weisen nach wie vor die eindeutige Signatur für nichtsequentielle Ionisation durch direkte Stoßionisation auf. Dabei wäre es nicht nur denkbar, sondern vermutlich sogar wahrscheinlich, dass auch für die Dreifach- bzw. Vierfachionisation die sequentiell/nichtsequentiell gemischten (0-1-3) Ionisationspfade 4 und 5 (für die Dreifachionisation) einen signifikanten Beitrag zur Ionisationsrate und damit zum Impulsspektrum liefern, wenn bereits die Doppelionisation durch sequentielle Ionisationsschritte dominiert wird. Das Impulsspektrum für den Pfad 4 ist in Abbildung 1.12 [FMU00] durch die Schraffierung //// angedeutet. Es ist aufgrund dessen, dass ein sequentiell durch Tunnelionisation erzeugtes Elektron kaum einen Beitrag zum Gesamtimpuls des Ion liefert, schmäler ( $p_{max} = 2 \times 2\sqrt{U_p}$ ) als das Impulsspektrum, welches bei komplett nichtsequentieller Ionisation zu erwarten ist ( $p_{max} = 3 \times 2\sqrt{U_p}$ ). Die Verteilung des Pfades 5 ist noch schmäler, da nur Tunnelionisationsschritte stattfinden. Eine Verschiebung der Maxima in der „Doppelstruktur“ weg vom klassischen Impulsmaximum ohne den Beitrag eines zurückgestreuten



**Abbildung 3.21:** Die Abbildung zeigt die Zählrate von  $\text{Ne}^{1+}$ - und  $\text{Ne}^{2+}$ -Ionen als Funktion der Intensität bei 800 nm Wellenlänge und einer Pulsdauer von 200 fs. Die Kurven 1-3 zeigen die entsprechenden ADK-Raten, wobei der nichtsequentielle Teil der experimentellen  $\text{Ne}^{2+}$  Kurve durch die ADK-Rate von  $\text{Ne}^{1+}$  multipliziert mit einem konstanten Faktor genähert wurde [LTC98].

Elektrons ( $p_{max} = 3 \times 2\sqrt{U_p}$ , bzw.  $p_{max} = 4 \times 2\sqrt{U_p}$ ) hin zu kleineren Impulsen ist jedoch erstaunlicherweise weder im  $\text{Ne}^{3+}$  noch im  $\text{Ne}^{4+}$  Impulsspektrum zu erkennen. Daher muss davon ausgegangen werden, dass alle kombinierte Ionisationspfade 2-9 von sequentieller und nichtsequentieller Ionisation und nicht nur die Pfade 4 und 5 im untersuchten Intensitätsbereich bei Neon keine wesentliche Rolle spielen. Darüber hinaus ist bei diesen Intensitäten auch der Anteil des komplett sequenziellen Pfades 10 vernachlässigbar klein und die Ionisation von  $\text{Ne}^{3+}$  und  $\text{Ne}^{4+}$  bei 1,5 und 2,0  $\text{PW}/\text{cm}^2$  muss deshalb ausschließlich über den vollständig nichtsequentiellen Pfad 1 (T-(e,3e)) bzw. (T-(e,4e)) stattfinden.

Dies ist ein erstaunliches Resultat, da sowohl (e,3e) als insbesondere auch (e,4e) Reaktionen im feldfreien Fall bei niedrigen Energien sehr unwahrscheinlich sind. In Anwesenheit des Laserfelds scheint es eine extrem effiziente Kopplung des Rückgestreuten mit den Targetelektronen zu geben, die dazu führt, dass gerade dieser Kanal dominant und damit wiederum zu sehr signifikanten Strukturen im Ionenspektrum führt. Es wäre interessant dieses Verhalten zu höheren Intensitäten hin zu verfolgen wo es nicht auszuschließen ist, dass dann nicht vielleicht doch noch die anderen Mechanismen eine größere Rolle spielen werden.

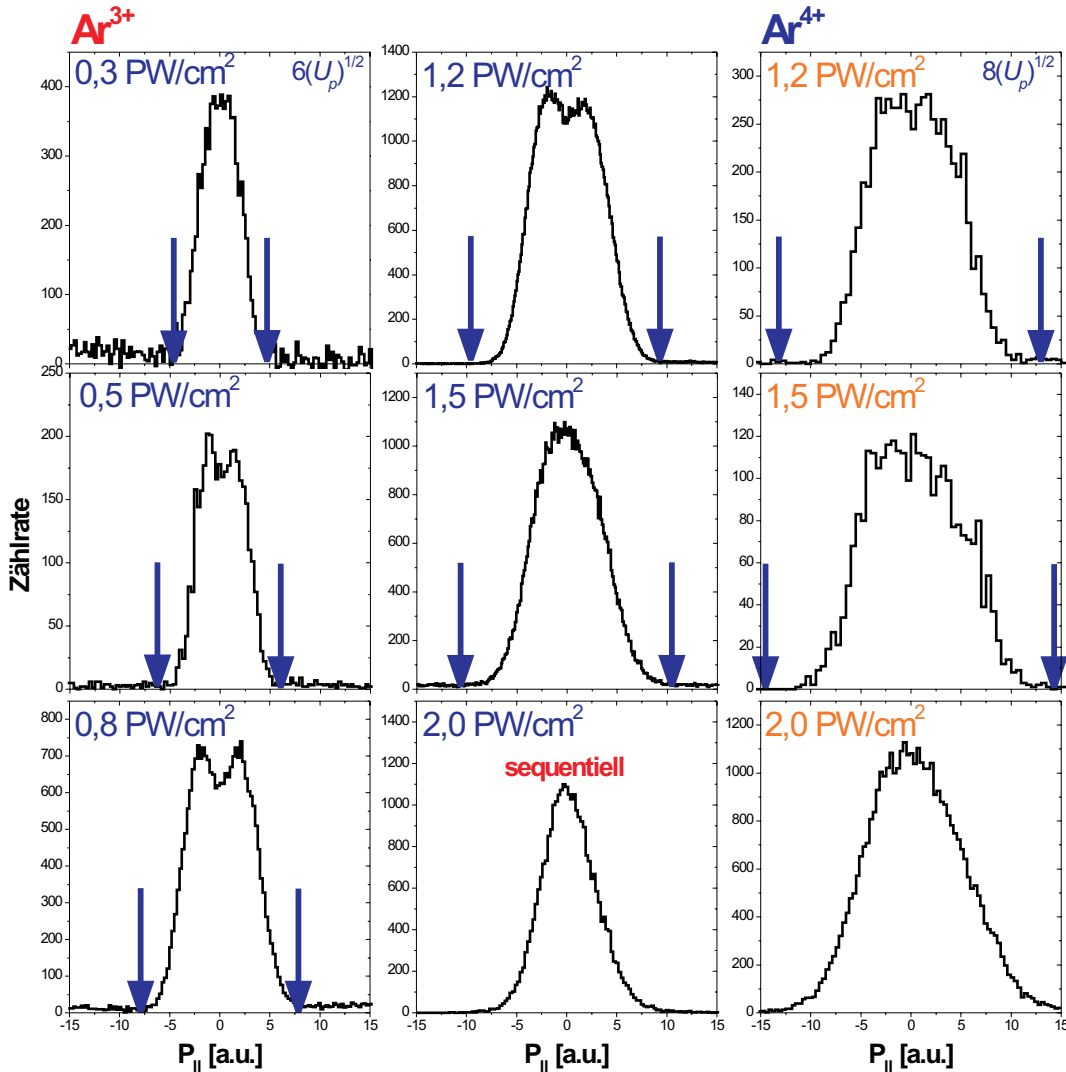
Abbildung 3.21 zeigt die Ausbeute von  $\text{Ne}^{1+}$ - und  $\text{Ne}^{2+}$ -Ionen als Funktion der Intensität bei Pulsdauern von 200 fs [LTC98]. Bei  $2 \text{ PW/cm}^2$  wurde gerade der nichtsequentielle Intensitätsbereich überschritten, so dass der sequentielle Anteil an der Gesamtrate lediglich um eine Faktor 5-10 größer ist als der nichtsequenzielle Anteil. Bei kürzeren Pulsdauern (25 fs bei den hier vorgestellten Messungen) verschieben sich die Kurven für die Ionisationsraten zu größeren Intensitäten, da dann weniger Zeit für sequentielle Ionisationsmechanismen zur Verfügung steht, so dass davon ausgegangen werden kann, dass sich dieser Faktor leicht verringern wird. Dies mag implizieren, dass deutlich weniger als 100% der Doppelionisation sequentiell stattfindet, was im Spektrum für  $2 \text{ PW/cm}^2$  in Abbildung 3.20 nicht wirklich zu sehen ist. Sind nun die Wirkungsquerschnitte für (e,3e) bzw. (e,4e)-Stöße an  $\text{Ne}^{1+}$  verhältnismässig groß, so scheint es trotzdem möglich, dass bei dieser Intensität, bei der die sequentielle Doppelionisation gerade erst wichtig wird und lange noch nicht sättigt<sup>3</sup>, der Ionisationspfad (T-(e,3e)) bzw. (T-(e,4e)) noch dominant ist, wie es auch die Messungen zeigen. Andererseits ist zu erwarten, dass bei Intensitäten die wahrscheinlich nicht viel höher als  $4 \text{ PW/cm}^2$  sein müssten, die Ionisationspfade 4 und 5 wichtig werden könnten, da die Raten dieser Pfade exponentiell mit der Intensität ansteigen (zwei Tunnelionisationen), im Gegensatz zu der Rate von Pfad 1 (nur die erste Tunnelionisation), die in Sättigung übergeht, so dass die Ionisationsrate nur noch mit dem Fokusbereich, in dem die Intensität groß genug für die erste Tunnelionisation ist, wächst. Dass sich der Wirkungsquerschnitte für die (e,3e) bzw. (e,4e)-Stöße mit der Intensität sehr stark ändern, ist nicht zu erwarten. Daher müssten sich die Ionenimpulsspektren aufgrund der nun wichtiger werdenden Anteile der Pfade 4 und 5 ändern. Ereignisse mit kleineren Impulsen, die zu einem (e,2e)-Stoß passen würden, sollten das tiefe Minimum im  $\text{Ne}^{3+}$  Spektrum auffüllen. Wenn die Pfade 4 und 5 dann bei noch höheren Intensitäten dominant werden, sollten auch die Breiten der Verteilungen kleiner werden.

#### Die Mehrfachionisation von Argon

Vollständig anders stellt sich die Situation bei der Mehrfachionisation von Argon dar. Die in Abbildung 3.22 gezeigten longitudinalen Impulsspektren wurden, wie auch die zuvor für Neon gezeigten, in einem Intensitätsbereich aufgenommen, in den Messungen [LTC98] wie auch Berechnungen [BF99] eine Überhöhung der jeweiligen Ionisationsrate um Größenordnungen im Vergleich zur erwarteten sequentiellen Ionisationsrate aufweisen. Ganz im Gegensatz zur Mehrfachionisation von Neon, ist in den Impulsspektren von  $\text{Ar}^{3+}$  lediglich in einem sehr eingeschränkten Intensitäts-

---

<sup>3</sup>Die Sättigungsintensität für einen Ionisationspfad ist erreicht, wenn die Ionisationswahrscheinlichkeit über diesen Pfad über den gesamten Puls integriert eins ist.



**Abbildung 3.22:** Die Abbildung zeigt die longitudinalen Ionenimpulse für die Dreifach- und Vierfachionisation von Argon bei Intensitäten von 0,3 bis 2,0  $\text{PW}/\text{cm}^2$  bzw. von 1,2 bis 2,0  $\text{PW}/\text{cm}^2$  mit 25 fs Pulsen bei einer Wellenlänge von 800 nm.

bereich ein nur sehr kleines Minimum bei kleinen Impulsen zu erkennen. Bei  $\text{Ar}^{4+}$  ist ein solches im gesamten untersuchten Intensitätsbereich überhaupt nicht mehr vorhanden. Außerdem liegen nahezu alle Ergebnisse deutlich unterhalb des klassischen  $2n\sqrt{U_p}$ -Limits. Auf der Grundlage dieser Spektren sollen nun als nächstes die einzelnen Ionisationspfade bei der Dreifachionisation diskutiert werden.

Der Pfad 1 (T-(e,3e)) spielt offensichtlich ganz im Gegensatz zur Mehrfachionisation von Neon gar keine Rolle, da dessen eindeutige Signatur, also große Impulse bis über  $p_{max} = 3 \times 2\sqrt{U_p}$  hinaus (wie bei Neon der Fall), sich nicht im Geringsten im Spektrum wiederfindet. Der Pfad 10, also die komplette sequentielle Ionisation





	1 × Rückstreuung	2 × Rückstreuung
Ionisation (e,2e)/(e,2e*)	2, 4, 6	8
Anregung (e,e*)/(e,e**)	3, 5, 7	9

**Tabelle 3.2:** Die Tabelle ordnet einige Ionisationspfade zur besseren Übersicht in zwei Kategorien ein: 1. Pfade die eine Ionisation beim einem Rückstreuprozess beinhalten und daher zu einer „Doppelstruktur“ mit denen im Spektrum (s. Abbildung 3.23) sichtbaren kinematischen Grenzen führt; 2. Pfade die nur Stoßanregung enthalten und daher das Minimum im Spektrum bei kleinen Impulsen auffüllen. Des Weiteren sind die Ionisationspfade in Gruppen mit nur einer und mit zwei Rückstreuungen eingeteilt.

Dabei war das berechnete und aus den Messungen extrahierte Verhältnis zwischen diesen beiden Pfaden  $\approx 0,4$  (s. Kapitel 3.3). Um nicht wesentlich mehr Impuls bei der Dreifachionisation aufzunehmen, muss das weitere Elektron durch eine Tunnelionisation emittiert werden. Dafür kommen von den oben aufgeführten die Ionisationspfade 2 (T-(e,2e\*)-T), 4 (T-T-(e,2e)), 3 (T-(e,e\*e\*)-T-T), 5 (T-T-(e,e\*)-T), 6 (T-(e,2e)-T), 7 (T-(e,e\*)-T-T), 8 (T-(e,e\*)-T-(e,2e)) und 9 (T-(e,e\*)-T-(e,e\*)-T) in Frage. Die Tabelle 3.2 ordnet diese Ionisationspfade zur besseren Übersicht in zwei Kategorien ein: 1. Pfade, die eine Ionisation durch einen Rückstreuprozess beinhalten und daher zu einer „Doppelstruktur“ mit den im Spektrum (s. Abbildung 3.23) sichtbaren kinematischen Grenzen führen; 2. Pfade, die nur Stoßanregung enthalten und daher das Minimum im Spektrum bei kleinen Impulsen auffüllen. Des Weiteren sind die Ionisationspfade in Gruppen mit nur einer und mit zwei Rückstreuungen eingeteilt.

Eine Möglichkeit, die zu Dreifachionisation ohne wesentliche Verbreiterung des Ionenspektrums führt, besteht darin, dass sich der Doppelionisation von Argon noch ein sequentieller Tunnelionisationsschritt anschließt (Pfade 6 und 7). Allerdings ist das ein Tunnelionisationsschritt bei einer Ionisationsenergie von  $\approx 41$  eV. Da diese Ionisationsenergie im Vergleich zu den Ionisationspotentialen von  $\text{Ar} \rightarrow \text{Ar}^{1+}$  mit  $\approx 15$  eV und  $\text{Ar}^{1+} \rightarrow \text{Ar}^{2+}$  mit  $\approx 28$  eV sehr viel höher liegt, wird es immer viel wahrscheinlicher sein, dass der zweite Tunnelionisationsschritt vom einfach geladenen Argon ausgeht (Pfade 4 und 5). Ausnahmen bilden die Pfade bei denen nach der Rückstreuung ein angeregtes  $\text{Ar}^{2+*}$ -Ion übrig bleibt (Pfade 2 und 3; näheres dazu weiter unten), und damit der anschließende Tunnelionisationsschritt erleichtert wird.

Die Signaturen im Impulsspektrum sollten nach obigen Überlegungen für den Pfad 2 und 4 ungefähr gleich sein, da zwei Elektronen gleichzeitig in einem Stoß und eines durch eine unabhängige Tunnelionisation erzeugt werden. Um aber dennoch eine Aussage über die Anteile der beiden Pfade machen zu können, ist es notwendig sich die Ionisationsenergien für die Tunnelionisationen genauer anzuschauen.

Die erste Tunnelionisation ist bei beiden Pfaden gleich. Bei 4 findet eine weitere, un-

### 3.4. Korrelierte Elektronendynamik bei Mehrfachionisation verschiedener Edelgase

---

abhängige Tunnelionisation statt. Das Ionisationspotential für diesen zweiten Schritt beträgt  $\approx 28$  eV. Als nächstes folgt bei beiden Pfaden die Rückstreuung und für 2 ein (e,2ee\*)-Stoß und für 4 ein (e,2e)-Stoß. In Pfad 2 findet nun die anschließende Tunnelionisation des angeregten Elektrons ( $\text{Ar}^{2+*} \rightarrow \text{Ar}^{3+}$ ) statt. Das Ionisationspotential dafür liegt, unter Berücksichtigung der jeweiligen Oszillatorstärken, je nach angeregtem Zustand bei  $\approx 10$ - $26$  eV<sup>4</sup>. Das heißt aber, dass die Tunnelionisation mit diesem Ionisationspotential mehr oder weniger äquivalent zu der zweiten Tunnelionisation im Pfad 4 ist, und damit ähnlich wahrscheinlich wie diese. Damit liegt der einzige Unterschied im Elektronenstoß. Prinzipiell ist ein Stoß, in dem 3 Elektronen miteinander wechselwirken, sehr viel unwahrscheinlicher als einer, an dem nur zwei Elektronen teilhaben. Das Verhältnis, welches aus feldfreien Stößen bekannt ist, beträgt etwa 1%, was wiederum bedeuten würde, dass der Pfad 2 nur einen Anteil von einem Prozent an der Gesamtzahlrate dieser beiden Pfade hat. Allerdings können sich die für die Stoßionisation bzw. die Ionisation plus Anregung notwendigen Energien unterscheiden, und damit das Verhältnis ändern. Das Ionisationspotential beim Elektronenstoß (e,2e) ( $\text{Ar}^{2+} \rightarrow \text{Ar}^{3+}$ ) in Pfad 4 beträgt  $\approx 41$  eV. Die Energie, die beim Elektronenstoß (e,2ee\*) im Pfad 2 aufgebracht werden muss, ist die Summe des Ionisationspotentials ( $\text{Ar}^{1+} \rightarrow \text{Ar}^{2+}$ ) und der notwendigen Anregungsenergie ( $\text{Ar}^{2+} \rightarrow \text{Ar}^{2+*}$ ). Das Ionisationspotential beträgt  $\approx 28$  eV. Die Energie für den Übergang zum ersten angeregten Zustand mit signifikanter Oszillatorstärke beträgt  $\approx 14$  eV. Die Summe mit  $\approx 42$  eV ist damit sogar ein wenig größer als das Ionisationspotential beim (e,2e)-Stoß in Pfad 4. Damit ist klar, dass der Ionisationspfad 4 (T-T-(e,2e)) eine dominante Rolle gegenüber dem Pfade 2 bei der Dreifachionisation spielen sollte.

So bleibt nur noch zu diskutieren, welche Beiträge die Ionisationspfade 3 (T-(e,e\*e\*)-T-T), 5 (T-T-(e,e\*)-T), 8 (T-(e,e\*)-T-(e,2e)) und 9 (T-(e,e\*)-T-(e,e\*)-T) zur Gesamtrate liefern. Wie bei allen anderen Pfaden, ist der erste Schritt eine Tunnelionisation. Die Pfade 3, 5 und 9 beinhalten des weiteren zwei weiter voneinander unabhängige Tunnelionisationen. Nur die Ionisationspotentiale unterscheiden sich. Bei Pfad 5 ist vor der Rückstreuung ein Tunnelionisationsschritt mit einem Ionisationspotential von  $\approx 28$  eV enthalten. Nach der Rückstreuung findet ein weiterer Tunnelionisationsschritt mit dem Ionisationspotential des angeregten  $\text{Ar}^{2+*}$ -Ions statt. Das Ionisationspotential dafür beträgt dabei immer noch  $\approx 18$ - $26$  eV (s. oben). Damit ist zunächst einmal bei niedrigeren Intensitäten die Ionisation über Pfad 4 dominant gegenüber Pfad 5, da Pfad 5 drei Tunnelionisationen bei relativ hohen Ionisationspotentialen beinhaltet und Pfad 4 nur zwei. Bei höheren Intensitäten wird eine Sequenz von drei Tunnelionisationen wahrscheinlicher (bis nur noch sequentiell ionisiert wird und die

---

<sup>4</sup>Übergänge zu noch höher angeregten Zuständen in  $\text{Ar}^{2+}$  haben wesentlich kleinere Oszillatorstärken.

Rückstreuung keine Rolle mehr spielt). Bei welcher Intensität Pfad 5 wichtiger wird, hängt von dem Verhältnis der Wirkungsquerschnitte für direkte Stoßionisation zu Stoßanregung des  $\text{Ar}^{2+}$ -Ions ab.

Auch in Pfad 9 sind drei Tunnelionisationsschritte enthalten. Der erste Schritt ist wie bei allen anderen Pfaden gleich. Nach der Rekollision, bei der das einfach geladene Argonion angeregt wird ( $\text{Ar}^{1+} \rightarrow \text{Ar}^{1+*}$ ), findet eine weitere Tunnelionisation mit einem Ionisationspotential von nur wenigen eV mit nahezu 100% Wahrscheinlichkeit statt. Danach hat das freigesetzte Elektron natürlich wiederum die Möglichkeit zurückgestreut zu werden. Bei Pfad 9 wird an dieser Stelle das verbliebene  $\text{Ar}^{2+}$ -Ion angeregt. Daraufhin beträgt das Ionisationspotential für den nächsten Tunnelionisationsschritt  $\approx 18 - 26$  eV (s. oben). Damit sind in diesem Pfad zwei Tunnelionisationsschritte bei Ionisationspotentialen von  $\approx 15$  eV und  $\approx 18 - 26$  eV wie in Pfad 2 und 4. Im Gegensatz zu Pfad 4, welcher schon über den Pfad 2 dominiert, sind im Pfad 9 aber zwei Elektron-Ion Stöße enthalten. Damit ist es sehr unwahrscheinlich, dass der Pfad 9 gegenüber dem Pfad 4 eine relevante Rolle spielt, es sein denn, die Wahrscheinlichkeit für die Stoßanregung durch ein rückstreuendes Elektron ist nahe eins, was nicht zu erwarten ist.

Dem Ionisationspfad 9 sehr ähnlich ist der Pfad 8. Auch hier finden zwei Rekollisionen statt. Die erste Rekollision führt bei beiden zu einer Anregung des einfach geladenen Argonions, worauf eine Feldionisation mit nahezu 100% Wahrscheinlichkeit folgt. Der nun folgende (e,2e)-Stoß unterscheidet diesen Pfad vom Pfad 7, bei dem eine sehr unwahrscheinliche Tunnelionisation bei einer Ionisationsenergie von  $\approx 41$  eV folgt. Deshalb wird der Pfad 7 nur bei hohen Intensitäten wichtig. Der Wirkungsquerschnitt für den (e,2e)-Stoß am doppelt geladenen Argonion wird sich mit der Intensität nicht stark ändern. Daraus folgt allerdings, dass dieser Mechanismus aufgrund der hundertprozentigen Wahrscheinlichkeit für die zweite Tunnelionisation trotz der zweifachen Rekollision bei kleinen Intensitäten sehr wichtig wird. Alle anderen Ionisationspfade, bei denen mehr Tunnelionisationen als die obligatorische erste auftreten werden bei kleinen Intensitäten, aufgrund des exponentiellen Zusammenhangs der Tunnelwahrscheinlichkeit mit der Feldstärke, keine Rollen mehr spielen.

Der Pfad 3 (T-(e,e\*e\*)-T-T) beinhaltet zwei Tunnelionisationsschritte nach dem (e,e\*e\*)-Stoß. Das Ionisationspotential von  $\text{Ar}^{1+**}$  ist schwierig zu berechnen und unterscheidet sich je nachdem in welche Zustände das Ion angeregt wird. Der Wirkungsquerschnitt des (e,e\*e\*)-Stoß allerdings ist völlig unbekannt. Unter der Annahme, dass das Ionisationspotential des doppelt angeregten Zustands von  $\text{Ar}^{1+}$  nur einige eV beträgt, ist die Wahrscheinlichkeit der Feldionisation bei diesen hier betrachteten Intensitäten 100%. Diese Annahme scheint berechtigt zu sein, da auch das einfach angeregte und einfach geladene  $\text{Ar}^{1+*}$ -Ion nur wenige eV Ionisationspo-

tential hat. Damit gleicht dieser Pfad dem Pfad 2, da das Ionisationspotential für die letzte Tunnelionisation die selbe ist ( $\approx 18-26$  eV s. oben). Der Unterschied liegt nur im Verhältnis der Wirkungsquerschnitte von  $(e,2ee^*)$ -Stoß zu  $(e,e^*e^*)$ -Stoß. Da aber auch hier drei Elektronen miteinander wechselwirken und sich der Wirkungsquerschnitt wahrscheinlich nicht um mehr als eine Größenordnung unterscheidet (für  $(e,2e)$  und  $(e,e^*)$  bei  $Ar^{1+}$  um einen Faktor zwei s. Kapitel 3.3), wird der Beitrag wie auch schon der für Pfad 2 klein gegenüber dem von Pfad 4 sein.

Zusammenfassend ist zu sagen:

1. Die Anteile der Ionisationspfade an der Gesamtionsisationsrate, welche die selbe Anzahl Tunnelionisationen mit ungefähr gleichen Ionisationsenergien beinhalten ( $2(T-(e,2ee^*)-T)$ ,  $3(T-(e,e^*e^*)-T-T)$ ,  $4(T-T-(e,2e))$ ), sollten sich nur durch die Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte der nichtsequenziellen Elektronenstöße unterscheiden.
2. Die Anteile der Ionisationspfade an der Gesamtionsisationsrate, bei denen sich die Anzahl der Tunnelionisationen und/oder die Ionisationspotentiale bei den Tunnelionisationen unterscheiden, hängen stark von der Intensität ab (s. Ratenungleichung der Tunnelionisation 1.8). Dabei hängt der Intensitätsbereich, bei dem der jeweilige Ionisationspfad einen nennenswerten Anteil an der Gesamtrate hat, sowie die Frage ob dieser überhaupt bei irgendeiner Intensität eine signifikante Rolle spielt, unter anderem von den Wirkungsquerschnitten der nichtsequenziellen Schritte ab.
3. Die Pfade 2 und 4, die zu einer „Doppelstruktur“ mit den selben klassischen kinematischen Grenzen wie bei der Doppelionisation führen, tragen definitiv zum  $Ar^{3+}$ -Spektrum bei. Das Minimum bei kleinen Impulsen wird durch die abgewandelten Prozesse 3 und 5 aufgefüllt, bei denen beim Elektronenstoß nicht ionisiert sondern nur angeregt wird.

Eine Ausnahme von diesen allgemeinen Aussagen, bilden die Pfade 8 und 9, bei denen zwei Rekollisionen stattfinden. Pfad 9 wird aufgrund dessen, dass hier zwei Tunnelionisationsschritte auftreten, die mit Tunnelionisationen in anderen Ionisationspfaden vergleichbar sind, die wiederum nur eine Rekollision beinhalten, immer nur einen kleinen Anteil zur Gesamtionenausbeute beitragen. Der Pfad 8 wird aus den oben genannten Gründen bei kleinen Intensitäten eine Rolle spielen.

Diese generellen qualitativen Betrachtungen zu den Beiträgen der einzelnen Ionisationspfade zur Dreifachionisation ließen sich im Prinzip auch für die Vierfachionisation durchführen. Dabei steigt die Vielfalt der Pfade mit steigendem Ladungszustand allerdings so stark an, so dass eine schon für die Dreifachionisation sehr komplexe Diskussion der Raten für höhere Ladungszustände nicht sinnvoll möglich

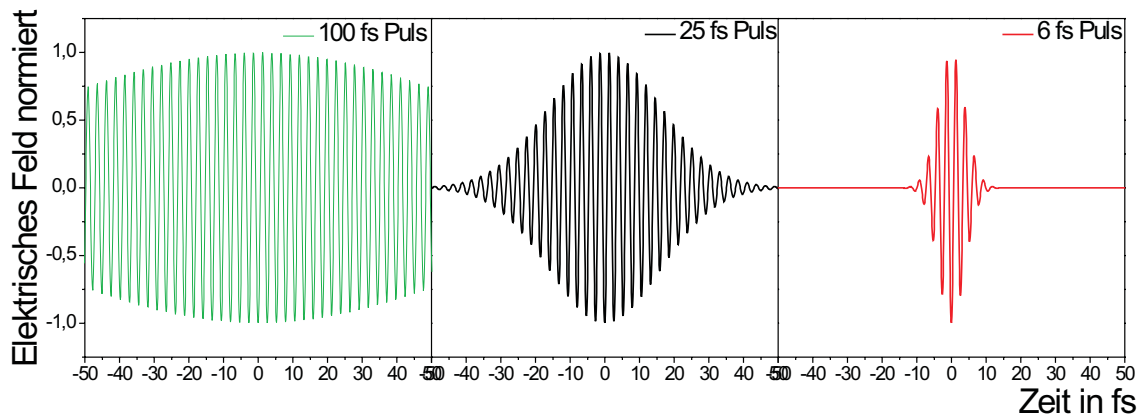
ist. Die zusammengefassten Aussagen sind aber auch für die allgemeine Mehrfachionisation zutreffend.

Bei diesen Argumentationen muss immer beachtet werden, dass alle hier betrachteten Stöße im Laserfeld stattfinden und sich die Wirkungsquerschnitte oder auch deren Verhältnisse gegenüber dem feldfreien Fall möglicherweise drastisch ändern können. Bei Messungen von (e,2e)-Stößen an Helium bei Elektronenenergien von  $\approx 1$  keV im überlagerten Laserfeld ( $\lambda = 1064$  nm,  $I = 5 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>) wurde zum Beispiel eine Erhöhung des Ionisationswirkungsquerschnitts um 10% festgestellt [Höh04]. Experimente zur Messung der Wirkungsquerschnitte für Anregung im Laserfeld wurden nur bei noch viel geringeren Intensitäten ( $I \approx 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>) durchgeführt [MN87], wobei es dafür auch theoretische Rechnungen gibt [RF76]. Da die Intensität, bei der diese experimentellen wie auch theoretischen Untersuchungen durchgeführt wurden, um Größenordnungen kleiner ist als die, bei der die Messungen zur Mehrfachionisation stattfanden, lassen die Ergebnisse aus diesen Untersuchungen nur auch keine wirklichen Rückschlüsse auf die hier betrachteten Mechanismen zu. Neuere theoretische wie auch experimentellen Untersuchungen dazu, wie sich die Wirkungsquerschnitte für die Ionisation und Anregung in Anwesenheit eines nicht perturbativen Laserfelds ändern gibt es nicht, so dass hier vollständiges „Neuland betreten“ wird.

### 3.5 Mehrfachionisation von Edelgasen bei sehr kurzen Pulsen

Wie in den beiden vorangegangenen Kapiteln beschrieben wurde, ist die Mehrfachionisation von Atomen in intensiven Laserfeldern besonders im Intensitätsbereich der nichtsequentiellen Ionisation nicht zuletzt aufgrund der Anzahl der involvierten geladenen Teilchen und ihrer zum Teil starken Korrelationen untereinander ein hochkomplexer Prozess, der sich momentan auch theoretisch nicht zufrieden stellend beschreiben lässt. Verkompliziert wird die Beschreibung noch dadurch, dass das Laserfeld Feldstärken erreicht, die mit der Feldstärke im Atom an der Stelle der äußeren Elektronenbahnen vergleichbar ist, und damit nicht mehr störungstheoretisch zu behandeln ist. Mit dem Rückstreumodell (s. Kapitel 1.2.3 und 1.3) wurde eine halbklassische Beschreibung der Elektronenkorrelation entwickelt, die neben ihrer Anschaulichkeit auch die beobachteten Ionenimpulsspektren für die Doppelionisation gut beschreibt [WWS<sup>+</sup>00b, WWS<sup>+</sup>00a, MFS<sup>+</sup>00, MUF<sup>+</sup>03]. Dieses Modell wurde auch in dieser Arbeit immer wieder herangezogen, um die Messdaten zu interpretieren. Dabei wurde bis jetzt immer angenommen, dass der Laserpuls unendlich lang ist, und daher die Einhüllende des Pulses zu vernachlässigen ist. Die Abbildung

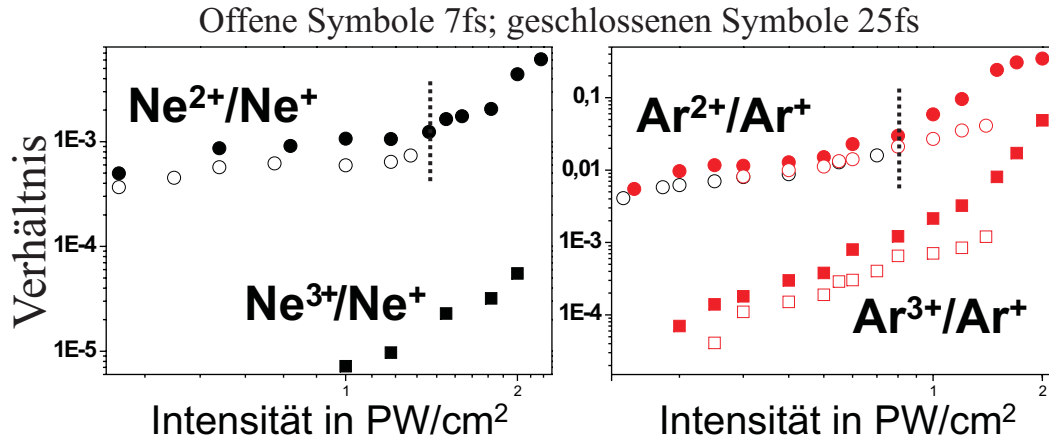
### 3.5. Mehrfachionisation von Edelgasen bei sehr kurzen Pulsen



**Abbildung 3.24:** Die Abbildung verdeutlicht die Unterschiede zwischen einem 100 fs, einem 25 fs und einem 6 fs Puls bei einer Wellenlänge von 800 nm. Während die zeitliche Variation der Einhüllenden bei einem 100 fs Puls zu vernachlässigen ist und bei einem 25 fs Puls im Maximum der Einhüllenden immer noch bei 4-5 Zyklen vergleichbare Feldstärken erreicht werden, wird in einem 6 fs Puls nur noch in einem Zyklus eine hohe Feldstärke erreicht.

3.24 verdeutlicht die Unterschiede im Feldverlauf, die bei verschiedenen Pulslängen bei 800 nm Wellenlänge auftreten. Alle bisher vorgestellten Spektren wurden bei Pulslängen von 23-25 fs aufgenommen. Bei dieser Pulslänge ist die Vernachlässigung der zeitlichen Änderung der Einhüllenden gerade noch zulässig, da diese noch um einen Faktor 10 langsamer ist als die Änderung des Feldes selbst. Bei den experimentell erreichten 6-7 fs (s. Kapitel 2) beinhaltet der Puls allerdings nur noch etwa 2,5 optische Zyklen, weshalb die zeitliche Änderung der Einhüllenden bei so kurzen Pulsen nicht mehr vernachlässigt werden kann. Bevor allerdings deren Auswirkung auf den Rückstreumechanismus diskutiert wird, soll als erstes die generelle Abhängigkeit der Ionenraten für die Mehrfachionisation von der Intensität bei 7 fs Pulsen betrachtet werden.

Die Abbildung 3.25 zeigt die gemessenen Verhältnisse der Ionenraten von Einfach- zur Doppel- und Dreifachionisation von Neon und Argon, als Funktion der Intensität für 25 und 7 fs. Die gestrichelten Linien kennzeichnen diejenige Intensität oberhalb derer die sequentielle Doppelionisation dominiert. Deutlich ist eine Unterdrückung der Verhältnisse bei kurzen Pulsen zu erkennen. Bei Argon wird die Unterdrückung um so stärker, je weiter die Intensität in den sequentiellen Bereich kommt, was einfach verständlich ist. Die Gleichung 1.8 gibt die Tunnelrate für die Tunnelionisation bei einem elektrostatischen Feld an, also eine Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein Elektron innerhalb eines bestimmten Zeitintervalls das Atom verläßt. Somit wird bei kurzen Pulsen die über den Puls integrierte Tunnelrate sprich die Ionisationswahrscheinlichkeit kleiner sein als bei langen Pulsen. Wenn zum Beispiel wie bei der sequentiellen Doppelionisation mehrere voneinander unabhängige Tunnelionisations-



**Abbildung 3.25:** Die Abbildung zeigt die gemessenen Verhältnisse der Ionisationsrate für die Einfach- zur Doppel- und Dreifachionisation von Neon und Argon, als Funktion der Intensität bei einer Wellenlänge von 800 nm. Die offenen Symbole sind Messungen für 7 fs während die geschlossenen Symbole Datenpunkte für 25 fs darstellen. Die gestrichelten Linien kennzeichnen die Intensität, oberhalb derer die sequentielle Doppelionisation dominiert.

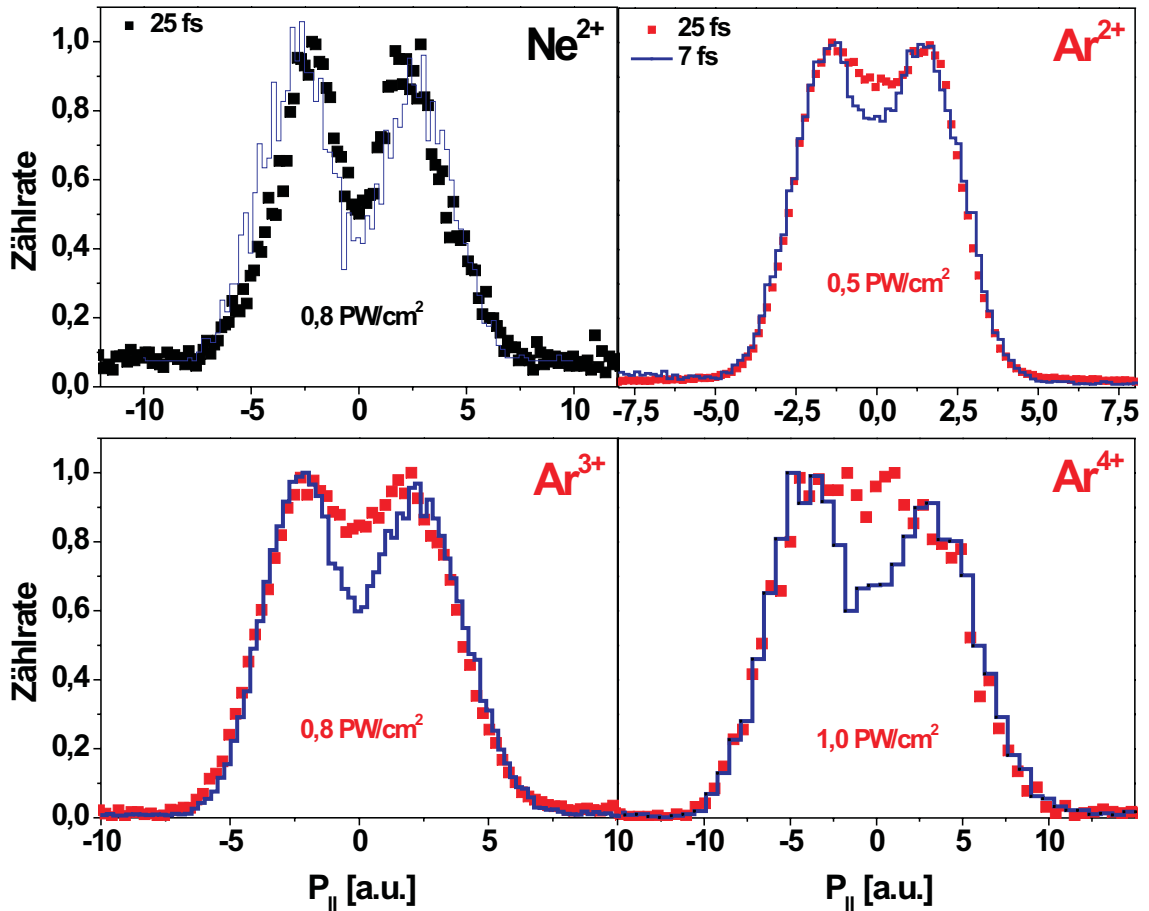
schritte notwendig sind, wird die über den Puls integrierte Wahrscheinlichkeit, dass alle notwendigen Tunnelionisationen innerhalb des kürzeren Pulses stattfinden, entsprechend kleiner. Deshalb unterscheiden sich die Verhältnisse für die verschiedenen Pulslängen bei hohen Intensitäten stark.

Im nichtsequenziellen Bereich unterscheiden sich die Verhältnisse der Ionenraten für die Doppelionisation messbar, und liegen bei 7 fs Pulsen ungefähr 50% für Neon und etwa 30% für Argon unter denjenigen bei 25 fs Pulsen. Da die Unterdrückung der anfänglichen Tunnelionisation für die Einfach- wie auch für die Doppelionisation durch die kürzeren Pulse gleichermaßen stattfindet, fällt die Pulsdauerabhängigkeit für diesen Ionisationsschritt durch die Bildung des Verhältnisses von Einfach- zu Doppelionisation heraus. Darum muss der Unterschied im nichtsequenziellen Ionisationsschritt liegen.

Bei langen Pulsen, bei denen die Änderung der Einhüllenden mit der Zeit keine Rolle spielt, ist der erste, ansteigende Teil des Pulses und der zweite, abfallende Teil des Pulses im Prinzip gleich. Es spielt für die Rückstreuung keine Rolle ob das rückstreuende Elektron im ansteigenden oder im abfallenden Teil durch die Barriere tunnelt. Bei kurzen Pulsen jedoch gleicht kein Zyklus dem anderen. Bei welchen Tunnelphasen das Elektron zum Ion mit genügend kinetischer Energie zurückkehrt, um noch ionisieren zu können, ist nun nicht mehr so einfach vorherzusagen, und hängt von der Steigung der Einhüllenden zur Tunnelphase und dem weiteren Pulsverlauf ab. Numerische Simulationen für die Doppelionisation durch direkte Stoßionisation



### 3.5. Mehrfachionisation von Edelgasen bei sehr kurzen Pulsen



**Abbildung 3.26:** Abbildung 3.26 zeigt die Ionenimpulsspektren für Ar<sup>2+</sup>, Ar<sup>3+</sup>, Ar<sup>4+</sup> und Ne<sup>2+</sup> für Pulsdauern von 7 und 25 fs, bei jeweils gleicher Intensität.

((e,2e)-Stoß) bei der Rückstreuung in einem 7 fs Puls zeigen eine Reduktion des Verhältnisses der Ionenerate von Doppel- zu Einfachionisation um 10-30%, gegenüber einem 25 fs Puls. Zu diesem Unterschied kann aus den obengenannten Gründen die reduzierte Wahrscheinlichkeit für den ersten Tunnelionisationsschritt bei kürzeren Pulsen nicht beitragen, so dass nur die Auswirkung der sich zeitlich schnell ändernden Einhüllenden des Pulses auf die kinematische Entwicklung des getunnelten und schließlich zurückgestreuten Elektrons die Unterdrückung der Doppelionisation durch den (e,2e)-Stoß erklären kann. Bei diesen Rechnungen wurde die Möglichkeit des Elektrons mehr als einmal zum Mutterion zurückzukehren vernachlässigt.

Ein anderer Vorschlag diesen Unterschied zu erklären wurde in [BAM<sup>+</sup>01] vorgestellt, und beruht gerade darauf, dass das Elektron fokussiert durch das Potential des Kerns mehrmals zum Ion zurückzukehren kann, sodass der Wirkungsquerschnitt für die Rekollision entsprechend erhöht wird. Für kürzere Pulse ist die Möglichkeit zu späteren Zeitpunkten zurückzukehren reduziert, oder für sehr kurze Pulse nicht

mehr gegeben, wodurch die Verhältnisse der Ionenraten von Mehrfach- zu Einfachionisation ebenfalls sinken sollten. Ob das Elektron wirklich mit einer nennenswerten Wahrscheinlichkeit erst in späteren Zyklen mit dem Ion kollidiert ist momentan noch in intensiver Diskussion. Neuere Experimente und Rechnungen zur Ionisation von Wasserstoffmolekülen in intensiven Laserpulsen scheinen darauf hinzuweisen, dass dies wirklich der Fall sein könnte [ATO<sup>+</sup>04], [TZL03b]. Zusammen mit den oben diskutierten kinematischen Effekt bei kurzen Pulsen und seine Auswirkung auf die Wahrscheinlichkeit der direkte Stoßionisation und RESI, wäre dies eine Möglichkeit die Unterdrückung der Verhältnisse von Einfach- zu Mehrfachionisation bei kürzeren Pulsen zu erklären.

Abbildung 3.26 zeigt die Ionenimpulsspektren für  $\text{Ar}^{2+}$ ,  $\text{Ar}^{3+}$ ,  $\text{Ar}^{4+}$  und  $\text{Ne}^{2+}$  für Pulsdauern von 7 und 25 fs, bei jeweils gleicher Intensität. Auffällig ist, dass sich die Form des Spektrums bei  $\text{Ne}^{2+}$  nicht ändert. Damit sollten sich auch das Verhältnis der Anteile der beiden Ionisationskanäle (direkte Stoßionisation ( $e,2e$ ) und RESI) zur Ionenrate nicht ändern (s. Kapitel 3.3). Für Argon ist in den Spektren aller Ladungszustände das Minimum bei kleinen Impulsen für 7 fs Pulse weit stärker ausgeprägt, als bei den 25 fs Pulsen. Daraus folgt, dass bei kurzen Pulsen RESI gegenüber den direkten Stoßionisationsprozessen bei der Mehrfachionisation von Argon unterdrückt wird. Der physikalische Ursprung dafür ist nicht bekannt. Möglicherweise bleibt im Mittel aufgrund der Kürze des Pulses weniger Zeit, um den angeregte Zustand noch zu ionisieren, da die dafür erforderliche Feldstärke im abfallenden Teil des Pulses nicht mehr hoch genug ist. Es kann selbst bei der Doppelionisation nicht mehr davon ausgegangen werden, dass nach der Rückstreuung das angeregte Ion zu 100% im weiteren Verlauf des Pulses ionisiert wird. Ein hoch angeregtes Elektron könnte auch in einem sogenannten „Light induced States“ angeregt werden (s. Kapitel 3.2). Laut Theorie hätten solche Zustände eine hohe Lebensdauer im Laserfeld, wodurch der RESI-Kanal ebenfalls unterdrückt werden würde [Mul99b], [WVTM03], [Mul99a].

Wirklich überraschend allerdings ist, dass das Verhältnis für die Ionenrate von  $\text{Ar}^{2+}$  zu  $\text{Ar}^+$  mit ungefähr 30% kleiner ist als das von  $\text{Ne}^{2+}$  zu  $\text{Ne}^+$  mit etwa 50%, obwohl bei der Mehrfachionisation von Argon mit RESI ein Ionisationspfad bei kurzen Pulsen unterdrückt ist, der bei der Doppelionisation von Neon nicht nur kaum eine Rolle spielt, sondern dessen Anteil an der Gesamtrate auch bei der Doppelionisation von Neon mit kurzen Pulsen offensichtlich nicht stärker als der Anteil der direkten Stoßionisation abnimmt. Auch die Ursache dieses Phänomens ist noch vollkommen unklar. Allerdings könnten mehrfachdifferentielle Wirkungsquerschnitte für die Doppel- und Mehrfachionisation von Edelgasen bei kurzen Pulsen, welche momentan noch nicht vorliegen, Hinweise auf die möglichen Ursachen der noch ungeklärten Fragen geben.

# Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden Untersuchungen zur Wechselwirkung von Edelgasatomen und Wasserstoffmolekülen mit intensiven Laserfeldern durchgeführt, wobei im Laserfeld Feldstärken erreicht werden, welche in der gleichen Größenordnung wie die atomaren Feldstärken in den untersuchten Systemen liegen. Dazu wurde ein Titansaphirlaserverstärker mit 3 kHz Repetitionsrate, der 25 fs lange Pulse mit Pulsenergien von bis zu 400  $\mu\text{J}$  bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm emittiert, mit einem speziell für diese Anwendung entwickelten Reaktionsmikroskop kombiniert [JRF<sup>+</sup>04].

Da ein besonderes Interesse an der Wechselwirkung von atomaren und molekularen Systemen mit sehr kurzen Pulsen besteht, die im Limit einen durch die Streuung eines geladenen Teilchens erzeugten Halbzykluspuls darstellen, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Pulskompressor aufgebaut, der die 25 fs langen Pulse (ungefähr 10 Zyklen) auf bis zu 5 fs mit nur noch 2 optischen Zyklen verkürzt. Mit diesem Kompressor war ein stabiler Messbetrieb mit 6-7 fs langen Pulsen möglich [RZF<sup>+</sup>04], [RZS<sup>+</sup>04], [RFZ<sup>+</sup>04].

Bei der Charakterisierung dieser kurzen Pulse wurden zum einen Standardtechniken wie die Autokorrelation zweiter Ordnung verwendet, aber auch neue Methoden, wie die Autokorrelation n-ter Ordnung mittels Ionisation eines Targetgases im Reaktionsmikroskop, sowie die Analyse der Pulsstrukturen durch die Auswertung der Protonenimpulsspektren bei der Ionisation von Wasserstoffmolekülen mit diesen kurzen Pulsen, entwickelt [RFZ<sup>+</sup>04]. Da diese neuen Methoden die Pulse im Reaktionsvolumen selbst analysieren, konnte damit auch nachgewiesen werden, dass die kurzen Pulse, welche auf dem Lasertisch erzeugt und charakterisiert wurden, auch im Reaktionsmikroskop dieselbe Länge und Struktur haben.

Mit der Kombination dieses Lasersystems mit dem Reaktionsmikroskop war es möglich für die Einfachionisation vollaufdifferentielle Wirkungsquerschnitte zu vermessen, die aufgrund der vorher bei solchen Experimenten noch nie erreichten hohen Auflösung resonante Strukturen zeigten, die bei den verwendeten hohen Intensitäten nicht erwartet wurden. Diese Strukturen sind bei mittleren Elektronenenergien unabhängig von der Edelgassorte und deuten auf generelle Merkmale der Wechselwirkung zwischen Atomen und dem Laserfeld hin [RZS<sup>+</sup>04]. Theoretische Untersuchungen

sagen zum Teil ein solches Verhalten voraus, allerdings für wesentlich kleinere Intensitäten.

Durch das Laserfeld werden hoch angeregte Zustände bevölkert, die durch das gemeinsame Potential des Kerns und des Lasers geformt werden (Light induced states) [Mul99b], [WVTM03], [Mul99a]. Wenn das Atom von diesen Zuständen aus ionisiert wird, führt dies zu resonanten Strukturen im Elektronenenergiespektrum.

Bei Elektronenergien nahe Null wurde in der Struktur der zweifach-differentiellen Impulsspektren eine eindeutige Abhängigkeit von der Edelgassorte entdeckt. Die genaue physikalische Ursache ist bis jetzt unbekannt. Es wird aber angenommen, dass das vom Laserfeld befreite Elektron, vom Laserfeld getrieben, bei kleinen Stoßenergien elastisch am Ion gestreut wird, und die atomare Struktur einen großen Einfluss auf die differentiellen und totalen Wirkungsquerschnitte dieses Stoßes hat. Dies ist von der Streuung von niederenergetischen Elektronen an Atomen in Abwesenheit eines externen Feldes schon seit langem bekannt (Ramsauer Townsend Streuung), so dass die Hoffnung besteht, mit diesen Messungen einen tieferen Einblick in die Streuung von Elektronen an einfach geladenen Ionen in Anwesenheit eines externen Feldes zu bekommen.

Bei 7 fs langen Pulsen verwischen sowohl die resonanten Strukturen bei mittleren Elektronenenergien sowie auch die von der Edelgassorte abhängigen Strukturen bei kleinen Elektronenenergien. Dies wird aufgrund der größeren Energieunschärfe der Photonen bei kürzeren Pulsen auch erwartet. Außerdem können durch so kurze Pulse die weit außen liegenden Zustände nicht effizient angeregt werden, da die klassische Umlaufzeit auf diesen Orbits die Pulsdauer zum Teil überschreitet.

Die systematische Untersuchung der Doppelionisation in intensiven Laserfeldern mit 25 fs langen Pulsen bei Intensitäten im nichtsequenziellen Bereich führte zur Klärung der Frage, woher die Unterschiede in den Ionenimpulsspektren der verschiedenen Edelgase in Richtung der Laserpolarisation kommen. Dies gelang mit Hilfe einer quantitativen Analyse der Verhältnisse von Stoßanregungs- zu Stoßionisationsquerschnitten bei der Rückstreuung für die verschiedenen Edelgase. Diese Verhältnisse unterscheiden sich stark. Während bei Neon der Ionisationskanal die Doppelionisation dominiert, bei dem das rückstreuende Elektron das Mutterion direkt stoßionisiert, spielt bei der Doppelionisation von Argon und Helium die Anregung durch den Elektron-Ion-Stoß mit der anschließenden Tunnelionisation des angeregten einfach geladenen Ions eine wichtigere Rolle. Da sich die Signatur der beiden Ionisationskanäle in den Ionenimpuls- und in den Elektronenkorrelationspektren stark unterscheidet, wirken sich die Unterschiede in den Verhältnissen der Stoßquerschnitte auch auf die differentiellen Wirkungsquerschnitte der Doppelionisation in intensiven Laserfeldern aus [JFZ<sup>+</sup>04].

Interessanterweise verschieben sich die Anteile der beiden Beiträge bei der Doppel-

ionisation bei 6-7 fs kurzen Pulsen für Argon, jedoch nicht für Neon. Es scheint, dass durch die Kürze der Pulse die sich der Stoßanregung anschließende Tunnelionisation unterdrückt wird. Gleichzeitig wurde aber in dieser Arbeit für die kurzen Pulse eine stärkere Abnahme des Verhältnisses von Einfach- zur Doppelionisation von Argon gegenüber der Abnahme des Verhältnisses für Neon beobachtet. Eine Ursache für dieses Verhalten ist im Moment noch nicht gefunden worden. Ein möglicher Ansatz, die unterschiedlich starke Unterdrückung in den Verhältnissen bei gleichzeitiger Beachtung der Veränderung der Ionenimpulsspektren bei kurzen Pulsen zu erklären, ist die oben erwähnte Analyse der Anteile der beiden verschiedenen Ionisationskanäle auf die kurzen Pulse, bei denen die zeitliche Änderung der Einhüllenden wichtig ist, zu erweitern, denn diese Analyse galt nur für unendlich lange Pulse. Desweiteren wurde in ihr von einer hundertprozentigen Tunnelionisationswahrscheinlichkeit des angeregten Ions ausgegangen, was die Wahrscheinlichkeit dieses Tunnelionisationsschritts bei kurzen Pulsen nicht richtig abschätzt.

Die Messungen der Ionenimpulsspektren bei der Mehrfachionisation von Edelgasen im nichtsequentiellen Intensitätsbereich führte zu der sehr überraschenden Entdeckung, dass die Dreifach- wie auch die Vierfachionisation von Neon hauptsächlich über die direkte Ionisation durch den (e,3e)- bzw. (e,4e)-Stoß des zuerst tunnelionisierten und vom Laserfeld zurückgetriebenen Elektrons mit dem Ion stattfindet [RZF<sup>+</sup>04]. Daher müssen die totalen Wirkungsquerschnitte für diese Stöße in Anwesenheit eines starken Laserfelds erstaunlich hoch sein. Dieser Ionisationskanal führt zu einer eindeutigen Singnatur in den Spektren, welche auch beobachtet wurde. Bei der Mehrfachionisation von Argon ist diese eindeutige Signatur nicht zu erkennen, so dass davon ausgegangen werden muss, dass Anregung bei den Elektron-Ion-Stößen eine wichtigere Rolle spielt. Die Diskussion der im Rahmen des Rückstreu-modells bei der Dreifachionisation möglichen bis zu 10 Ionisationskanäle führte zu generellen Aussagen darüber, welche Kanäle bei der Mehrfachionisation bei welchen Intensitäten einen signifikanten Anteil an der Gesamtrate liefern können und welche einen lediglich vernachlässigbaren Beitrag bilden.

Der nächste Schritt wäre eine systematische theoretische Untersuchung der Raten der einzelnen Ionisationskanäle in Abhängigkeit von der Intensität. Die schon begonnen Messungen zur Mehrfachionisation mit kurzen Pulsen kann dabei helfen, Ionisationskanäle, die mehrere optische Zyklen brauchen, von denjenigen zu trennen, bei denen die Ionisation innerhalb eines Zyklus stattfinden, womit sich möglicherweise die Vielzahl der Kanäle reduzieren ließe.

In dieser Arbeit wurde eine neue Qualität in der Abbildung von Reaktionen von Atomen mit intensiven Laserfeldern erreicht. Neben den volldifferentiellen Wirkungsquerschnitten für die Einfachionisation, die mit ihrer hohen Auflösung neue Maßstäbe für den Test entsprechender Theorien darstellen, wurden auch volldifferentielle

Wirkungsquerschnitte für die Doppelionisation in Dreifachkoinzidenz aller drei Reaktionsprodukte aufgenommen. Mit diesen Daten ist im Rahmen der Rückstreutheorie die Rekonstruktion der Phase, zu welcher der Stoß stattfindet, möglich und damit die Rekonstruktion des kompletten nichtsequentiellen Doppelionisationsprozesses. Daraus lassen sich wiederum die Streuquerschnitte in der Anwesenheit eines starken Laserfeldes extrahieren. Im Unterschied zu anderen Streuexperimenten von Elektronen an Atomen in starken Laserfeldern [Höh04], in denen die Elektronen durch ebene Wellen beschrieben werden können, handelt es sich hier um Wellenpakete. Die vom Laser aus einem bestimmten Anfangszustand heraus ionisierten Elektronen haben sozusagen eine „Vorgeschichte“, so dass damit ein interessanter Ansatzpunkt für eine neue Stoßphysik besteht. Mit den Messungen zur Mehrfachionisation öffnet sich ein Fenster zur Physik der Vielteilchendynamik in intensiven Laserfeldern, wobei das Verständnis für diese Physik der Vielteilchendynamik in starken elektrischen Feldern allgemein wichtig für die in der Einleitung beispielhaft genannten Anwendungen ist.

Auf dem Weg, die Lücke zwischen der Untersuchung von Reaktionen von atomaren und molekularen Systemen mit Wechselfeldern hin zur Untersuchung von singulären Störungen durch die Streuung eines geladenen Teilchen an diesen Systemen zu schließen, wurde mit den Messungen bei 6-7 fs (2,4-2,8 optische Zyklen) langen Pulsen ein wichtiger Beitrag geleistet. Um die Grenzen zu noch kürzeren Pulsen und höheren Pulsenergien zu verschieben und die komplette Kontrolle über das elektrische Feld eines Pulses zu gewinnen, sind Verbesserungen am Lasersystem geplant, wobei ein Aufbau zur Stabilisierung der Phase zwischen der Einhüllenden und der Trägerfrequenz nahezu vollendet ist.

Eine völlig neue Quelle intensiver Laserstrahlung stellt der TESLA-FEL (Free Electron Laser) dar. Die Photonenenergien liegen hier um einen Faktor 10-100 höher als bei den optischen Lasern, wobei dieselben Intensitäten erreicht werden. Damit liegen sie in der selben Größenordnung wie und höher als die Bindungsenergie des Elektrons auf der ersten Bohrschen Bahn im Wasserstoffatom. Daher ist zu erwarten, dass Atome und Moleküle eine ganz andere Reaktion auf die Störung durch solche Wechselfelder zeigen. Aus der Motivation heraus, diese Reaktionen zu untersuchen und damit ein völlig neues Gebiet in der Physik der Wechselwirkungen von Atomen und Molekülen mit elektrischen Feldern zu erschließen, wird derzeit ein neues Reaktionsmikroskop aufgebaut, welches Anfang 2005 nach Hamburg transportiert wird, um erste Messungen an dieser neuartigen Lichtquelle durchzuführen.

# Anhang A

## A.1 Atomare Einheiten

In der Atomphysik werden häufig die *atomaren Einheiten* verwendet. Die Basiseinheiten dieses Systems für Länge, Masse, Ladung und Geschwindigkeit richten sich nach den entsprechenden Größen für ein Elektron im Grundzustand des Wasserstoffatoms. Demnach ergeben sich die folgenden Basisgrößen und Naturkonstanten:

### Basiseinheiten und Naturkonstanten

$r_e = 1 \text{ au} = 5,2918 \cdot 10^{-11} \text{ m}$	Bohrscher K-Schalenradius des Wasserstoff
$v_e = 1 \text{ au} = 2,1877 \cdot 10^6 \text{ m/s}$	Geschwindigkeit auf der Bohrschen Bahn
$m_e = 1 \text{ au} = 9,1095 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$	Ruhemasse des Elektrons
$q_e = e = 1 \text{ au} = 1,6022 \cdot 10^{-19} \text{ As}$	Ladung des Elektrons
$\hbar = m_e v_e r_e = 1 \text{ au}$	Drehimpulsquantum
$c = e^2 / (\hbar \alpha) = 137 \text{ au}$	Lichtgeschwindigkeit

Hilfreich ist oft die Kenntnis der Umrechnungsfaktoren zwischen atomaren Einheiten und anderen gängigen Einheiten:

### Umrechnungsfaktoren

Energie	$E [\text{eV}] = 27,2 \cdot E [\text{au}]$
Impuls	$p [\text{kg m/s}] = 1,995 \cdot 10^{-24} \cdot p [\text{au}]$
max. E-Feldstärke im Puls	$1 \text{ au} \hat{=} 35,1 \text{ PW/cm}^2$

## A.2 Sellmeiergleichungen

Die Sellmeiergleichungen geben den Brechungsindexverlauf optischer Materialien wieder. Aus diesem Verlauf lassen sich die Dispersionskoeffizienten  $k_i$  in  $\text{fs}^i/\text{mm}$  bestimmen. Die wichtigen Koeffizienten  $k_2$  und  $k_3$  sind durch

$$k_2 = 10^{33} \cdot \frac{\lambda^3}{2\pi \cdot c^2} \frac{\partial^2 n(\lambda)}{\partial \lambda^2} \quad (\text{A.21})$$

$$k_3 = -10^{48} \cdot \frac{\lambda^4}{4\pi^2 \cdot c^2} \left[ 3 \frac{\partial^2 n(\lambda)}{\partial \lambda^2} + \lambda \frac{\partial^3 n(\lambda)}{\partial \lambda^3} \right] \quad (\text{A.22})$$

gegeben. Dabei bezeichnet  $c$  die Lichtgeschwindigkeit in m/s,  $\lambda$  die Wellenlänge in  $\mu\text{m}$  und  $n(\lambda)$  den Brechungsindex.

Die folgenden Sellmeiergleichungen geben den Brechungsindexverlauf von verschiedenen Edelgasen wieder [DK60]:

Helium:

$$n_{He}(\lambda) = \sqrt{1 + 6,927 \cdot 10^{-5} \cdot p \left[ 1 + \frac{2,24 \cdot 10^5}{(\lambda \cdot 10^4)^2} + \frac{5,94 \cdot 10^{10}}{(\lambda \cdot 10^4)^4} + \frac{1,72 \cdot 10^{16}}{(\lambda \cdot 10^4)^6} \right]} \quad (\text{A.23})$$

Neon:

$$n_{Ne}(\lambda) = \sqrt{1 + 1,335 \cdot 10^{-4} \cdot p \left[ 1 + \frac{2,24 \cdot 10^5}{(\lambda \cdot 10^4)^2} + \frac{8,09 \cdot 10^{10}}{(\lambda \cdot 10^4)^4} + \frac{3,56 \cdot 10^{16}}{(\lambda \cdot 10^4)^6} \right]} \quad (\text{A.24})$$

Argon:

$$n_{Ar}(\lambda) = \sqrt{1 + 5,547 \cdot 10^{-4} p \left[ 1 + \frac{5,15}{\lambda^2 \cdot 10^3} + \frac{4,19}{\lambda^2 \cdot 10^6} + \frac{4,09}{\lambda^2 \cdot 10^8} + \frac{4,32}{\lambda^2 \cdot 10^9} \right]} \quad (\text{A.25})$$

Die Koeffizienten sind so gewählt, dass die Wellenlänge in  $\mu\text{m}$  und der Druck  $p$  in bar einzusetzen ist.

Weitere eingesetzte optische Materialien waren:

Quarzglas:

$$n_{FS}(\lambda) = \sqrt{1 + \frac{0,6961663\lambda^2}{\lambda^2 - 0,0684043^2} + \frac{0,4079426\lambda^2}{\lambda^2 - 0,1162414^2} + \frac{0,8974794\lambda^2}{\lambda^2 - 9,896161^2}} \quad (\text{A.26})$$

Calciumfluorid:

$$n_{CaF_2}(\lambda) = \sqrt{1 + \frac{0,5675888\lambda^2}{\lambda^2 - 2,52643 \cdot 10^{-3}} + \frac{0,4710914\lambda^2}{\lambda^2 - 0,0100782} + \frac{3,8484723\lambda^2}{\lambda^2 - 1200,556}} \quad (\text{A.27})$$



## A.2. Sellmeiergleichungen

---

BK7-Glas:

$$n_{BK7}(\lambda) = \sqrt{1 + \frac{1,03961212\lambda^2}{\lambda^2 - 0,0060007^2} + \frac{0,231792344\lambda^2}{\lambda^2 - 0,0200170^2} + \frac{1,01046945\lambda^2}{\lambda^2 - 103,560653^2}} \quad (\text{A.28})$$

Calcit ordentliche Achse:

$$n_{Calcite_o}(\lambda) = \sqrt{2,69705 + \frac{0,0192064}{\lambda^2 - 0,01820} - 0,0151624 \cdot \lambda^2} \quad (\text{A.29})$$

Calcit außerordentliche Achse:

$$n_{Calcite_e}(\lambda) = \sqrt{2,18438 + \frac{0,0087309}{\lambda^2 - 0,01018} - 0,0024411 \cdot \lambda^2} \quad (\text{A.30})$$

und Luft:

$$n_{Luft}(\lambda) = 1 + p \cdot 10^{-8} \left[ 26445,9 + \frac{1,205}{\lambda} + \frac{148,7}{\lambda^2} + \frac{0,02712}{\lambda^3} \right]. \quad (\text{A.31})$$



# Anhang B, Mathematika Skripte

## B.1 Astigmatismusausgleich

Um den Astigmatismus des Laserstrahls, wie er aus dem Verstärkersystem kommt, auszugleichen, müssen als erstes die Strahlparameter in der p- und s- Ebene bestimmt werden. Dazu wird der Strahl mit einer Linse mit 0,75 m Brennweite fokussiert und mittels variabler Abschwächer so weit abgeschwächt, dass die Intensität im Dynamikbereich der verwendeten CCD-Kamera (WinCam 2000) liegt, mit der das Strahlprofil an verschiedenen Stellen hinter der Linse bestimmt wird. Mit den Strahlprofilen werden die  $1/e^2$ -Breiten in der s- und p- Ebene bestimmt, die dann als Funktion des Abstandes aufgetragen werden. An diese Datenpunkte lässt sich dann die Ausbreitungsgleichung eines Gaußstrahls anpassen, wodurch die Strahlparameter festgelegt werden. Die so gewonnenen Strahlparameter bilden die Eingangswerte für die folgende Mathematikaberechnung.

In dieser werden als erstes die Strahlparameter vor der Linse berechnet. Da die Raumrichtung der Berechnung aber nun der Propagationsrichtung der Pulse entgegengerichtet ist, muss die Raumachse in der Rechnung gespiegelt werden. Danach folgt die Propagation bis zum ersten Hohlspiegel. Dieser wird vertikal gekippt, und hat deshalb in der s- und p-Ebene unterschiedliche Fokusslängen. Nachdem die Strahlparameter hinter dem Spiegel berechnet wurden, wird die Stelle bestimmt, bei welcher der Strahl rund ist. Dabei ist die Position dieser Stelle abhängig vom Winkel des Hohlspiegels. Der Strahl propagiert bis zu dieser Stelle, an der dann auch der zweite Hohlspiegel stehen soll. Dessen Winkel wird so bestimmt, dass die Radien der Wellenfronten nach diesem Spiegel gleich sind. Damit stimmen die Strahlparameter in der s- und p-Ebene nach dem Teleskop überein.

Normalerweise ist der Strahl nach dem Teleskop nicht kollimiert, sondern er ist divergent oder konvergent. Mit der richtigen Kombination der Fokusslängen der Hohlspiegel und des Winkels des ersten Spiegels, lässt sich ein kollimierter Strahl erzeugen. Bei der Wahl der Hohlspiegel muss darauf geachtet werden, dass es im Teleskop kein Zwischenfokus gibt, da es sonst zur Ionisation der Luft kommt und damit der Puls zerstört wird.

```

= 800 10-9; H Wellenlänge L
zlv0 = 0.74697; H Die bestimmten Strahlparameter an der Linse zlv0=
  Abstand zum Fokus in s-Richtung L
zrv0 = 0.00948; H Rayleighlänge in s-Richtung L
zlh0 = 0.73445; H Die bestimmten Strahlparameter an der Linse zlv0=
  Abstand zum Fokus in p-Richtung L
zrh0 = 0.01014; H Rayleighlänge in p-Richtung L
f1 = -0.5; H 1. Spiegel L
f2 = 0.75; H 2. Spiegel L
f3 = 0.1; H 3. Spiegel L
f = 0.75; H Linse zu Strahlvermessen L

qv = zlv0 + á zrv0; H q-Parameter in s-Richtung L
qh = zlh0 + á zrh0; H q-Parameter in p-Richtung L

qv0 =  $\frac{qv \cdot f}{f - qv}$ ; H Linsenrücktransformation L
qh0 =  $\frac{qh \cdot f}{f - qh}$ ;
qv0 = -Re@qv0D + á Im@qv0D + 0.175;
H Richtungsänderung und Propagation bis zum ersten Spiegel L
qh0 = -Re@qh0D + á Im@qh0D + 0.175;

1 = Cos@23.7 °D; H Kippung des ersten Hohlspiegels L

qv1 =  $\frac{qv0 \cdot f1 \cdot 1}{f1 \cdot 1 - qv0}$ ; H der Spiegel wird vertikal verkippt L
qh1 =  $\frac{qh0 \cdot f1 \cdot 1}{f1 \cdot 1 - qh0}$ ;
z = NAz1 ê.

SolveA  $\frac{Im@qv1D}{Pi} \left[ 1 + j \frac{z1 + Re@qv1D y^2}{Im@qv1D} \right] = \frac{Im@qh1D}{Pi} \left[ 1 + j \frac{z1 + Re@qh1D y^2}{Im@qh1D} \right], z1 \in \mathbb{R}$ 
H Die Stelle ausrechnen an der die Strahlradien gleich groß sind L
H Stelle hinter 1. Spiegel an der der Strahl rund ist L

8-0.50334, 0.246238<

&  $\frac{Im@qv1D}{Pi} \left[ 1 + j \frac{z@@DD + Re@qv1D y^2}{Im@qv1D} \right]$  H Strahlradius bei z L

0.00560768

```

```

T1 = 881, z@2DD<, 80, 1<<;
H Propagation bis zur Stelle z HStelle des 2. Spiegell hinter 1. Spiegel L
qh2 =  $\frac{T1@1DD@1DD \ qh1 + T1@1DD@2DD}{T1@2DD@1DD \ qh1 + T1@2DD@2DD}$ ;
qv2 =  $\frac{T1@1DD@1DD \ qv1 + T1@1DD@2DD}{T1@2DD@1DD \ qv1 + T1@2DD@2DD}$ ;
Rh = 1 ê Re@1 ê qh2D;
H die Wellenfrontradien unterscheiden sich noch vorm 2. Spiegel L
Rv = 1 ê Re@1 ê qv2D;
2 = 3 ê. SolveA  $\frac{Hf2 \ 3 - RhL}{f2 \ Rh \ 3} == \frac{Hf2 \ 3 - RvL}{f2 \ Rv \ 3}$ , 3E
H Berechnung des Winkels der die Strahlradien anpasst,
  Spiegel 2 ist auch vertikal verkippt L
8-1.05731, 0.945795<

R =  $\frac{Hf2 \ 2@2DD - RhL}{f2 \ Rh \ 2@2DD}$ 
ArcCos@ 2@2DDD ê Degree
H Spiegel 2 muss im Winkel von 2 stehen, um die Strahlparamter anzupassen L
-0.00132096

18.9512

T2h = 881, 0<, 8-1 ê Hf2 \ 2@2DDL, 1<<;H 2. Spiegel horizontal L
T2v = 881, 0<, 8-1 ê Hf2 ê 2@2DDL, 1<<;H 2. Spiegel vertikal L
Th = T2h.T1;
Tv = T2v.T1;
qh3 =  $\frac{Th@1DD@1DD \ qh1 + Th@1DD@2DD}{Th@2DD@1DD \ qh1 + Th@2DD@2DD}$  H q-Paramter hinter dem Teleskop L
-19.6217 + 120.288 á

T3 = 881, 3.5<, 80, 1<<;H Propagation bis zum Spiegel in der Kammer 3 m L
T4 = 881, 0<, 8-1 ê f3, 1<<;H Hohlspiegel in der Kammer L
T = T4.T3;
q4 =  $\frac{T@1DD@1DD \ qh3 + T@1DD@2DD}{T@2DD@1DD \ qh3 + T@2DD@2DD}$ ;
Im@q4D 1000000 H Raylaylänge in der Kammer in µm L
0 = 1000000 ê  $\frac{Im@q4D \ Pi}{f}$  H Fokusradius in der Kammer in µm L
81.649

4.5598

```

## B.2 Pulsanalyse

Zur Analyse des Pulses wird das Spektrum des Pulses und die Autokorrelation zweiter Ordnung mit einem konventionellen Autokorrelator aufgenommen [SKWH80], [DFMS85], [DR96]. Um mit dem Autokorrelationsspektrum eine Aussage treffen zu können, inwieweit der erzeugte Puls dem theoretische erreichbaren Limit gleicht, muss aus dem Pulsspektrum und der Dispersion der Dispersionsspiegel, des Calciumfluoridprismenkompressors und natürlich der des Materials ein theoretisch erreichbares Autokorrelationsspektrum berechnet werden.

Dazu werden die Dispersionskurven der einzelnen optischen Elemente, welche die Dispersion zweiter Ordnung als Funktion der Wellenlänge angeben, addiert und in eine Funktion der Frequenz umgerechnet. Um die Phasenfunktion zu erhalten, wird diese Funktion zweimal integriert.

Das Spektrum wird als Funktion der Wellenlänge gemessen. Dabei ist zu beachten, dass immer eine Leistung pro Wellenlängenintervall gemessen wird. Daher müssen die gemessenen Werte bei der Transformation zum Frequenzspektrum mit dem Quadrat der Frequenz gewichtet werden.

$$\frac{dI}{d\lambda} = -\frac{\nu^2}{c} \frac{dI}{d\nu} \quad (\text{B.32})$$

Da aber nicht das Leistungsspektrum sondern das Feldamplitudenspektrum für die weitere Berechnung benötigt wird, muss aus diesem nun schon gewichtetem Spektrum die Wurzel gezogen werden.

Nun kann die Funktion  $\tilde{A}(\nu) = |\tilde{A}(\nu)|e^{i\phi(\nu)}$  fouriertransformiert werden. Dies geschieht mit einer diskreten Fouriertransformation des Arrays. Dabei geht der Frequenzbereich des Arrays von  $0 - 10^{16}$  Hz, um im Zeitraum eine Auflösung von 0,1 fs pro Kanal zu erreichen. Aus dem gewonnenen komplexen Feldverlauf, lässt sich die Pulsform

$$|A(t)|^2 = F(t) \cdot F^*(t) \quad (\text{B.33})$$

und die Autokorrelation zweiter Ordnung berechnen

$$C(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} [|F(t) + F(t - \tau)|^2]^2 dt. \quad (\text{B.34})$$

So lässt sich die Kombination von Dispersionsspiegeln und die Einstellung des Prismenkompressors am Computer optimieren und die gemessene Autokorrelation mit der theoretisch erreichbaren Limit vergleichen.

```

SetDirectory@"E:\\2004.04.22"D;
H Importieren der Spektren und der Dispersionkurven L
a = Import@"ne3.5bar870-430.spe.dat"D;
dispersion = Import@"gesamt17ref-10,5-10m.dat"D;
prismendispersion = Import@"caf2500-8.6.dat"D;
H Untergrund auf null setzen L
a = Table@a@@iDD@iDD, a@@iDD@2DD-0<, 8i, 1, 2048<D;
a = Table@a@@iDD@iDD, If@a@@iDD@2DD < 15, 0, a@@iDD@2DDD<, 8i, 1, 2048<D;
ListPlot@a, PlotRange 8-10, 2000<, PlotJoined TrueD

H Die beiden Dispersionkuven werden Interpoliert, ... L
Phasenspektrum = Interpolation@dispersionD;
Prismenspektrum = Interpolation@prismendispersionD;
H um trotz verschiedener Binsize miteinander addiert werden zu können L
temp = Join@Table@a@@iDD@iDD, 0<, 8i, 1, 220<D,
      Table@a@@iDD@iDD, Phasenspektrum@a@@iDD@iDDD + Prismenspektrum@a@@iDD@iDDD<,
      8i, 221, 1426<D, Table@a@@iDD@iDD, 0<, 8i, 1427, 2048<DD;
ListPlot@temp, PlotJoined True, PlotRange 88600, 900<, 8-200, 500<<D

H Die Dispersion wird in eine Funktion der Frequenz umgerechnet L
Phasefrequenz = Table@8299792458 109 ê a@@iDD@iDD, temp@@iDD@2DD<, 8i, 1, 2048<D;
H Das Spektrum wird in ein Frequenzspektrum umgerechnet und die Wurzel gezogen,
da die elektrische Feldstärke gebraucht wird und
eine Leistung in Wellenlängenintervall gemessen wurde L
b = Table@8299792458 109 ê a@@iDD@iDD,
      Sqrt@299792458 109 ê Ha@@iDD@iDDL2 a@@iDD@2DDD<, 8i, 1, 2048<D;
H Mittlere Frequenz L
c = Table@b@@iDD@2DD2, 8i, 1, 2048<D;
d = Table@8b@@iDD@2DD2 b@@iDD@iDD<, 8i, 1, 2048<D;
Plus @d
Plus @c

H Das Frequenzspektrum und die Dispersionfunktion werden interpoliert ... L
Frequenzspektrum = Interpolation@bD;
Phasefrequenzint = Interpolation@PhasefrequenzD;
temp = Table@Frequenzspektrum@5 i 1010D, 8i, 0, 199999<D;
GDD = Table@Phasefrequenzint@5 i 1010D, 8i, 0, 199999<D 10-30;

H Die gegebene Dispersion zweiter
Ordnung wird zweimal zu Phase aufintegriert L
D1 = Table@0, 8i, 1, 5000<D;
For@i = 5001, i < 11000, D1 = Append@D1, D1@@i - 1DD + GDD@@iDD 2 Pi 5 1010D; i++D;
D1 = Join@D1, Table@D1@@10999DD, 8i, 11000, 200000<DD;
D2 = Table@0, 8i, 1, 5000<D;
For@i = 5001, i < 11001, D2 = Append@D2, D2@@i - 1DD + D1@@iDD 2 Pi 5 1010D; i++D;
tempD2 = Interpolation@D2D;
D2 = Table@tempD2@iD, 8i, 1, 200000<D;

H Die Phase wird an das Frequenzspektrum multipliziert L
temp = temp ã-ã D2;

H Fouriertransformation L
spektfour = FourierA temp
Plus @temp

```

```

H Der Puls liegt im Anfang und im Ende
  des Arrays und wird durch umsordieren zusammengesetzt L
puls = Table@spektfour@@iDD, 8i, 198001, 200000<D;
puls = Join@puls, Table@spektfour@@iDD, 8i, 1, 2000<DD;
ListPlot@Re@pulsD, PlotJoined True, PlotRange AllD
ListPlot@puls Conjugate@pulsD, PlotJoined True, PlotRange AllD
versuch = Join@Table@spektfour@@iDD, 8i, 100001, 200000<D,
  Table@spektfour@@iDD, 8i, 1, 100000<DD;
copmplexconversuch = Conjugate@versuchD;

ListPlot@Re@versuchD, PlotRange 8898000, 103000<, 80, 0.01<<D

H Die Autokorrelation wird berechnet L
autocorr = Table@Sum@Hversuch@@iDD + versuch@@i + jDDL
  Hcopmplexconversuch@@iDD + copmplexconversuch@@i + jDDL^2 ,
  8i, 98000, 103000<D, 8j, -1000, 1000<D;

H Dem Puls und der Autokorrelation wird wieder eine Zeitachse gegeben L
PulsTime = Join@Table@8Hi - 1001L 10-1, puls@@i + 1580DD Conjugate@puls@@i + 1580DDD<,
  8i, 1, 1000<D, Table@8Hi - 1001L 10-1,
  puls@@i + 1580DD Conjugate@puls@@i + 1580DDD<, 8i, 1001, 2000<DD;
AutocorrTime = Join@Table@8Hi - 1001L 10-1, autocorr@@iDD<, 8i, 1, 1000<D,
  Table@8Hi - 1001L 10-1, autocorr@@iDD<, 8i, 1001, 2000<DD;

ListPlot@PulsTime, PlotRange 88-60, 60<, 80, 0.002<<, GridLines
  88-40, -30, -20, -10, -8.5, 0, -2.5, 10, 20, 30, 40<, Automatic<, PlotJoined TrueD
ListPlot@AutocorrTime, PlotRange All, PlotJoined TrueD

Export@"puls.dat", N@Re@PulsTimeDD, "Table"D;
Export@"autocorr.dat", N@Re@AutocorrTimeDD, "Table"D;

```



# Literaturverzeichnis

- [ADK86] AMMOSOV, M. V. ; DELONE, N. B. ; KRAINOV, V. P.: Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. In: *Sov. Phys. JETP* 64 (1986), Nr. 6, S. 1191
- [AFM<sup>+</sup>79] AGOSTINI, P. ; FABRE, F. ; MAINFRAY, G. ; PETITE, G. ; RAHMAN, N. K.: Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms. In: *Phys. Rev. Lett.* 42 (1979), Nr. 17, S. 1127
- [Agr89] AGRAWAL, G. P. ; LIAO, P. F. (Hrsg.) ; KELLEY, P. L. (Hrsg.): *Quantum electronics - Principles and applications*. Bd. 2: *Nonlinear fiber optics*. Academic Press, 1989
- [AOB<sup>+</sup>03] ALNASER, A. S. ; OSIPOV, T. ; BENIS, E. P. ; WECH, A. ; SHAN, B. ; COCKE, C. L. ; TONG, X. M. ; LIN, C. D.: Rescattering Double Ionization of D<sub>2</sub> and H<sub>2</sub> by Intense Laser Pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 91 (2003), Nr. 16, S. 163002
- [ATO<sup>+</sup>04] ALNASER, A. S. ; TONG, X. M. ; OSIPOV, T. ; VOSS, S. ; MAHARJAN, C. M. ; RANITOVIC, P. ; ULRICH, B. ; SHAN, B. ; CHANG, Z. ; LIN, C. D. ; COCKE, C. L.: Routes to Control of H<sub>2</sub> Coulomb Explosion in Few-Cycle Laser Pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004), Nr. 18, S. 183202
- [BAM<sup>+</sup>01] BHARDWAJ, V. R. ; ASEYEV, S. A. ; MEHENDALE, M. ; YUDINA, G. L. ; VILLENEUVE, D. M. ; RAYNER, D. M. ; IVANOV, M. Y. ; CORKUM, P. B.: Few Cycle Dynamics of Multiphoton Double Ionization. In: *Phys. Rev. Lett.* 86 (2001), Nr. 16, S. 3522
- [BC89] BURNETT, N. H. ; CORKUM, P. B.: Cold-plasma production for recombination extreme-ultraviolet lasers by optical-field-induced ionization. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 6 (1989), Nr. 6, S. 1195
- [BF99] BECKER, A. ; FAISAL, F.H.M.: S -matrix analysis of ionization yields of noble gas atoms at the focus of Ti:sapphire laser pulses. In: *Journal*

- of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 32 (1999), Nr. 14, S. L335–L343
- [BIC96] BRABEC, Thomas ; IVANOV, Misha Y. ; CORKUM, Paul B.: Coulomb focusing in intense field atomic processes. In: *Phys. Rev. A* 54 (1996), Nr. 4, S. R2551
- [BLK94] BECKER, W. ; LOHR, A. ; KLEBER, M.: Effects of rescattering on above-threshold ionization. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 27 (1994), Nr. 14, S. L325–L332
- [BM92] DE BOER, M. P. ; MULLER, H. G.: Observation of large populations in excited states after short-pulse multiphoton ionization. In: *Phys. Rev. Lett.* 68 (1992), Nr. 18, S. 2747
- [BP] DE BOHAN, A. ; PIRAUX, B. *priv. communication*
- [BR85] BOYER, K. ; RHODES, C. K.: Atomic Inner-Shell Excitation Induced by Coherent Motion of Outer-Shell Electrons. In: *Phys. Rev. Lett.* 54 (1985), Nr. 14, S. 1490
- [BRM00] BERNSHTAM, V.A. ; RALCHENKO, Yu V. ; MARON, Y.: Empirical formula for cross section of direct electron-impact ionization of ions. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 33 (2000), Nr. 22, S. 5025–5032
- [CBB89] CORKUM, P. B. ; BURNETT, N. H. ; BRUNEL, F.: Above-threshold ionization in the long-wavelength limit. In: *Phys. Rev. Lett.* 62 (1989), Nr. 11, S. 1259
- [CCZB96] CHELKOWSKI, Szczepan ; CONJUSTEAU, André ; ZUO, Tao ; BANDRAUK, André D.: Dissociative ionization of  $H_2^+$  in an intense laser field: Charge-resonance-enhanced ionization, Coulomb explosion, and harmonic generation at 600 nm. In: *Phys. Rev. A* 54 (1996), Nr. 4, S. 3235
- [CN02] CHEN, J. ; NAM, C. H.: Ion momentum distributions for He single and double ionization in strong laser fields. In: *Phys. Rev. A* 66 (2002), S. 053415
- [Cor93] CORKUM, P. B.: Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. In: *Phys. Rev. Lett.* 71 (1993), Nr. 13, S. 1994

- [DAY<sup>+</sup>04] DIMITRIOU, K. I. ; ARBO, D.G. ; YOSHIDA, S. ; PERSSON, E. ; BURGDÖRFER, J.: Origin of the double peak structure in the momentum distribution of single ionization of atoms driven by strong laser fields. In: *Phys. Rev. A accepted* (2004)
- [DFMS85] DIELS, M. ; FONTAINE, J. J. ; McMICHAEL, I. C. ; SIMONI, F.: Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy. In: *Appl. Opt.* 24 (1985), S. 1270
- [DK60] DALGARNO, A. ; KINGSTON, A. E.: The refractive indices and verdet constants of the inert gases. In: *Proc. of the Royal Soc. of London A* 259 (1960), Nr. 1298, S. 424
- [DK91] DELONE, N. B. ; KRAINOV, V. P.: Energy and angular electron spectrum for the tunnel ionization of atoms by strong low-frequency radiation. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 8 (1991), Nr. 6, S. 1207
- [DR96] DIELS, Jean-Claude ; RUDOLPH, Wolfgang: *Ultrashort laser pulse phenomena*. Academic Press, 1996 (Optics and Photonics)
- [EDM<sup>+</sup>00] EICHMANN, U. ; DÖRR, M. ; MAEDA, H. ; BECKER, W. ; SANDNER, W.: Collective Multielectron Tunneling Ionization in Strong Fields. In: *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000), Nr. 16, S. 3550
- [ELR<sup>+</sup>03] EREMINA, E. ; LIU, X. ; ROTTKE, H. ; SANDNER, W. ; DREISCHUH, A. ; LINDNER, F. ; GRASBON, F. ; PAULUS, G.G. ; WALTHER, H. ; MOSHAMMER, R. ; FEUERSTEIN, B. ; ULLRICH, J.: Laser-induced non-sequential double ionization investigated at and below the threshold for electron impact ionization. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 36 (2003), Nr. 15, S. 3269–3280
- [FBCK92] FITTINGHOFF, D. N. ; BOLTON, P. R. ; CHANG, B. ; KULANDER, K. C.: Observation of nonsequential double ionization of helium with optical tunneling. In: *Phys. Rev. Lett.* 69 (1992), Nr. 18, S. 2642
- [FBCK93] FITTINGHOFF, D. N. ; BOLTON, P. R. ; CHANG, B. ; KULANDER, K. C.: Observation of nonsequential double ionization of helium with optical tunneling. In: *Phys. Rev. Lett.* 69 (1993), Nr. 18, S. 2642
- [FBM<sup>+</sup>87] FREEMAN, R. R. ; BUCKSBAUM, P. H. ; MILCHBERG, H. ; DARACK, S. ; SCHUMACHER, D. ; GEUSIC, M. E.: Above-threshold ionization with subpicosecond laser pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 59 (1987), Nr. 10, S. 1092

- [Fem01] FEMTOLASERS: *Femtopower compact pro*. Femtolasers Produktions GmbH, 2001
- [Fis00] FISCHER, Daniel: *Aufbau eines Reaktionsmikroskops zur Untersuchung von Ion-atom-Stößen*. d.fischer@mpi-hd.mpg.de, Universität Freiburg, Diplomarbeit, November 2000
- [Fis03] FISCHER, Daniel: *Mehr-Teilchen-Dynamik in der Einfach- und Doppelionisation von Helium durch geladene Projektile*. d.fischer@mpi-hd-mpg.de, Universität Heildeberg, Diss., Dezember 2003
- [FMBB86] FREEMAN, R. R. ; MCILRATH, T. J. ; BUCKSBAUM, P. H. ; BASHKANSKY, M.: Pondermotive effects on angular distributions of photoelectrons. In: *Phys. Rev. Lett.* 57 (1986), Nr. 25, S. 3156
- [FMF<sup>+</sup>01] FEUERSTEIN, B. ; MOSHAMMER, R. ; FISCHER, D. ; DORN, A. ; SCHRÖTER, C. D. ; DEIPENWISCH, J. ; LOPEZ-URRUTIA, J. R. C. ; HÖHR, C. ; NEUMAYER, P. ; ULLRICH, J. ; ROTTKE, H. ; TRUMP, C. ; WITTMANN, M. ; KORN, G. ; SANDNER, W.: Separation of Recollision Mechanisms in Nonsequential Strong Field Double Ionization of Ar: The Role of Excitation Tunneling. In: *Phys. Rev. Lett.* 87 (2001), S. 043003
- [FMG84] FORK, R. L. ; MARTINEZ, O. E. ; GORDON, J.P.: Negative dispersion using pairs of prisms. In: *Opt. Lett.* 9 (1984), Nr. 5, S. 150
- [FMU00] FEUERSTEIN, B. ; MOSHAMMER, R. ; ULLRICH, J.: Nonsequential multiple ionization in intense laser pulses: interpretation of ion momentum distributions within the classical ‘rescattering’ model. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 33 (2000), Nr. 21, S. L823–L830
- [FRB<sup>+</sup>97] FISHER, Vladimir I. ; RALCHENKO, Yuri V. ; BERNSHTAM, Vladimir A. ; GOLDGIRSH, Alexander ; MARON, Yitzhak ; VAINSHTEIN, Leonid A. ; BRAY, Igor ; GOLTEN, Helen: Electron-impact-excitation cross sections of hydrogenlike ions. In: *Phys. Rev. A* 62 (1997), Nr. 1, S. 329
- [FSH<sup>+</sup>92] FRASINSKI, L. J. ; STANKIEWICZ, M. ; HATHERLY, P. A. ; CROSS, G. M. ; CODLING, K.: Molecular H<sub>2</sub> in intense laser fields probed by electron-electron, electron-ion, and ion-ion covariance techniques. In: *Phys. Rev. A* 46 (1992), Nr. 11, S. 6789

- [FT03a] FEUERSTEIN, Bernold ; THUMM, Uwe: Fragmentation of  $H_2^+$  in strong 800-nm laser pulses: Initial-vibrational-state dependence. In: *Phys. Rev. A* 67 (2003), S. 043405
- [FT03b] FEUERSTEIN, Bernold ; THUMM, Uwe: Mapping of coherent and decohering nuclear wave-packet dynamics in  $D_2^+$  with ultrashort laser pulses. In: *Phys. Rev. A* 67 (2003), S. 063408
- [GFMM94] GIBSON, G. N. ; FREEMAN, R. R. ; MCILRATH, T. J. ; MULLER, H. G.: Excitation and ionization dynamics in short-pulse multiphoton ionization. In: *Phys. Rev. A* 49 (1994), Nr. 5, S. 3870
- [GP01] GORESLAVSKI, Sergei P. ; POPRUZHENKO, Sergei V.: Nonsequential double ionization: a quasiclassical analysis of the Keldysk.type transition amplitude. In: *Optics Express* 8 (2001), Nr. 7, S. 395
- [GPKB01] GORESLAVSKII, S. P. ; POPRUZHENKO, S. V. ; KOPOLD, R. ; BECKER, W.: Electron-electron correlation in laser-induced nonsequential double ionization. In: *Phys. Rev. A* 64 (2001), S. 053402
- [GRT75] GONTIER, Y. ; RAHMAN, N. K. ; TRAHIN, M.: Effect of Intensity on Multiphoton Ionization. In: *Phys. Rev Lett.* 34 (1975), Nr. 13, S. 779
- [Har00] VAN DER HART, Hugo W.: Sequential versus non-sequential double ionization in strong laser fields. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 33 (2000), Nr. 20, S. L699–L705
- [HB00] VAN DER HART, Hugo W. ; BURNETT, Keith: Recollision model for double ionization of atoms in strong laser fields. In: *Phys. Rev. A* 62 (2000), Nr. 1, S. 013407
- [HBM97] HERTLEIN, Marcus P. ; BUCKSBAUM, Philip H. ; MULLER, H.G.: Evidence for resonant effects in high-order ATI spectra. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 30 (1997), Nr. 6, S. L197
- [Höh04] HÖHR, Cornelia: *Kinematisch vollständige Experimente zur Ionisation im Elektronenstoß und Laserfeld.* c.hoehr@mpi-hd-mpg.de, Universität Heidelberg, Diss., April 2004
- [HWW97] HANSCH, P. ; WALKER, M. A. ; WOERKOM, L. D. V.: Resonant hot-electron production in above-threshold ionization. In: *Phys. Rev. A* 55 (1997), Nr. 4, S. 2535

- [JFZ<sup>+</sup>04] DE JESUS, V.L.B. ; FEUERSTEIN, B. ; ZROST, K. ; FISCHER, D. ; RUDENKO, A. ; AFANEH, F. ; SCHRÖTER, C.D. ; MOSHAMMER, R. ; ULLRICH, J.: Atomic structure dependence of nonsequential double ionization of He, Ne and Ar in strong laser pulses. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 37 (2004), Nr. 8, S. L161–L167
- [JRF<sup>+</sup>04] DE JESUS, V.L.B. ; RUDENKO, A. ; FEUERSTEIN, B. ; ZROST, K. ; SCHRÖTER, C.D. ; MOSHAMMER, R. ; ULLRICH, J.: Reaction microscopes applied to study atomic and molecular fragmentation in intense laser fields: non-sequential double ionization of helium. In: *J. electron spectroscopy and related phenomena* 141 (2004), S. 127
- [Kel64] KELDYSH, L. V.: In: *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 47 (1964), S. 1945
- [Kel96] KELLER, Ursula: *Ultrakurzzeit-Laserphysik*. ETH Zürich, 1996
- [KKW81] KRUIT, P. ; KIMMAN, J. ; DER WIEL, M.J. V.: Absorption of additional photons in the multiphoton ionisation continuum of xenon at 1064, 532 and 440 nm. In: *J. Phys. B* 14 (1981), S. L597
- [KSK92] KULANDER, Kenneth C. ; SCHAFFER, Kenneth J. ; KRAUSE, Jeffrey L.: *Advances in atomic, molekular, and optical physics*. Bd. Supplement 1: *Time-dependent studies of multiphoton processes*. Academic Press, 1992, S. 247
- [KST<sup>+</sup>93] KONDO, K. ; SAGISAKA, A. ; TAMIDA, T. ; NABEKAWA, Y. ; WATANABE, S.: Wavelength dependence of nonsequential double ionization in He. In: *Phys. Rev. A* 48 (1993), Nr. 4, S. R2531
- [LB91] LAHMAM-BENNANI, A.: Recent developments and new trends in (e,2e) and (e,3e) studies. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 24 (1991), Nr. 10, S. 2401–2442
- [LGE00] LEIN, M. ; GROSS, E. K. U. ; ENGEL, V.: Intense-Field Double Ionization of Helium: Identifying the Mechanism. In: *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000), Nr. 22, S. 4707
- [LJW86] L'HUILLIER, Anne ; JÖNSSON, Lars ; WENDIN, Göran: Many-electron effects in multiphoton ionization: Screening effects in single-electron ionization. In: *Phys. Rev. A* 33 (1986), Nr. 6, S. 3938

- [LKSB95] LEWENSTEIN, M. ; KULANDER, K. C. ; SCHAFER, K. J. ; BUCKSBAUM, P. H.: Rings in above-threshold ionization: A quasiclassical analysis. In: *Phys. Rev. A* 51 (1995), Nr. 2, S. 1495
- [LLD<sup>+</sup>03] LÉGARÉ, F. ; LITVINYUK, I. V. ; DOOLEY, P. W. ; QUÉRÉ, F. ; BANDRAUK, A. D. ; VILLENEUVE, D. M. ; CORKUM, P. B.: Time-Resolved Double Ionization with Few Cycle Laser Pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 91 (2003), Nr. 9, S. 093002
- [LLP85] LEHMEIER, H. J. ; LEUPACHER, W. ; PENZKOFER, A.: Nonresonant third order hyperpolarizability of rare gases and N<sub>2</sub> determined by third harmonic generation. In: *Opt. Comm.* 56 (1985), Nr. 1, S. 67
- [Lot68] LOTZ, Wolfgang: In: *Zeitschrift für Physik* 216 (1968), Nr. 3, S. 241
- [LTC98] LAROCHELLE, S. ; TALEBPOUR, A. ; CHIN, S.L.: Non-sequential multiple ionization of rare gas atoms in a Ti:Sapphire laser field. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 31 (1998), Nr. 6, S. 1201–1214
- [MBT<sup>+</sup>93] MEVEL, Eric ; BREGER, Pierre ; TRAINHAM, Rusty ; PETITE, Guillaume ; AGOSTINI, Pierre: Atoms in strong optical fields: Evolution from multiphoton to tunnel ionization. In: *Phys. Rev. Lett.* 70 (1993), Nr. 4, S. 406
- [McG97] MCGUIRE, J. H.: *Electron correlation dynamics in atomic collisions*. Cambridge University Press, 1997
- [MFCW89] MCILRATH, T. J. ; FREEMAN, R. R. ; COOKE, W. E. ; VAN WOERKOM, L. D.: Complex spatial structure of ion yield arising from high-intensity multiphoton ionization. In: *Phys. Rev. A* 40 (1989), Nr. 5, S. 2770
- [MFS<sup>+</sup>00] MOSHAMMER, R. ; FEUERSTEIN, B. ; SCHMITT, W. ; DORN, A. ; SCHRÖTER, C. D. ; ULLRICH, J. ; ROTTKE, H. ; TRUMP, C. ; WITTMANN, M. ; KORN, G. ; HOFFMANN, K. ; W. SANDNER<sup>3, 4</sup>: Momentum Distributions of Ne<sup>n+</sup> Ions Created by an Intense Ultrashort Laser Pulse. In: *Phys. Rev. Lett.* 83 (200), Nr. 3, S. 447
- [Mit66] MITTLEMAN, Marvin H.: Single and Double Ionization of He by Electrons. In: *Phys. Rev. Lett.* 16 (1966), Nr. 12, S. 498
- [MK98] MULLER, H. G. ; KOOIMAN, F. C.: Bunching and Focusing of Tunneling Wave Packets in Enhancement of High-Order Above-Threshold Ionization. In: *Phys. Rev. Lett.* 81 (1998), Nr. 6, S. 1207

- [MN87] MASON, N.J. ; NEWELL, W.R.: Simultaneous electron-photon excitation of the helium  $2^3S$  state. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 20 (1987), Nr. 10, S. L323–L325
- [Mor02] MORGNER, Uwe. *Erzeugung und Propagation optischer Laserpulse - Optische Nachrichtentechnik IV*. 2002
- [Mor03] MORGNER, Uwe. *Programm zur Berechnung von Dispersion*. 11 2003
- [MS64] MARCATILI, E. A. J. ; SCHMELTZER, R. A.: Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers. In: *The Bell System Technical Journal* 43 (1964), 7, S. 1783
- [MTW83] MULLER, H.G. ; TIP, A. ; VAN DER WIEL, M.J.: Ponderomotive force and AC Stark shift in multiphoton ionisation. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 16 (1983), Nr. 22, S. L679–L685
- [MUF<sup>+</sup>03] MOSHAMMER, R. ; ULLRICH, J. ; FEUERSTEIN, B. ; FISCHER, D. ; DORN, A. ; SCHRÖTER, C. D. ; LÓPEZ-URRUTIA, J. R. C. ; HÖHR, C. ; ROTTKE, H. ; TRUMP, C. ; WITTMANN, M. ; KORN, G. ; HOFFMANN, K. ; SANDNER, W.: Strongly directed electron emission in non-sequential double ionization of Ne by intense laser pulses. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 36 (2003), Nr. 6, S. L113–L119
- [Mul99a] MULLER, H. G.: Tunneling Excitation to Resonant States in Helium as Main Source of Superponderomotive Photoelectrons in the Tunneling Regime. In: *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999), Nr. 16, S. 3158
- [Mul99b] MULLER, H.G.: Numerical simulation of high-order above-threshold-ionization enhancement in argon. In: *Phys. Rev. A* 60 (1999), Nr. 2, S. 1341
- [NLH<sup>+</sup>02] NIIKURA, Hiromichi ; LEGARE, F. ; HASBANI, R. ; BANDRAUK, A. D. ; IVANOV, Misha Y. ; VILLENEUVE, D. M. ; CORKUM, P. B.: Sub-laser-cycle electron pulses for probing molecular dynamics. In: *Nature* 417 (2002), S. 917
- [NLR<sup>+</sup>03] NIIKURA, Hiromichi ; LEGARE, F. ; R.HASBANI ; IVANOV, Misha Y. ; VILLENEUVE, D. M. ; CORKUM, P. B.: Probing molecular dynamics with attosecond resolution using correlated wave packet pairs. In: *Nature* 421 (2003), S. 826



- [NSOS<sup>+</sup>97] NISOLI, M. ; SILVESTRI, S. D. ; O. SVELTO, R. S. ; FERENCZ, K. ; SPIELMANN, Ch. ; S. SARTANIA, and F. K.: Compression of high-energy laser pulses below 5 fs. In: *Optics Lettes* 22 (1997), Nr. 8, S. 522
- [NSS96] NISOLI, M. ; SILVESTRI, S. D. ; SVELTO, O.: Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique. In: *Applied Physics Letters* 68 (1996), Nr. 20, S. 2793–2795
- [NSS<sup>+</sup>98] NISOLI, M. ; STAGIRA, S. ; SILVESTRI, S. D. ; SVELTO, O. ; SARTANIA, S. ; CHENG, Z. ; G. TEMPEA ; SPIELMANN, C. ; FRAUSZ, F.: Toward a Terawatt-Scale Sub-10-fs Laser Technology. In: *IEEE J. Quant. Elec.* 4 (1998), Nr. 2, S. 414
- [PBNW94] PAULUS, G. G. ; BECKER, W. ; NICKLICH, W. ; WALTHER, H.: Rescattering effects in above-threshold ionization: a classical model. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 27 (1994), Nr. 21, S. L703–L708
- [PG92] PRADHAN, A.K. ; GALLAGHER, J.W.: An evaluated compilation of theoretical data sources for electron-impact excitation of atomic ions. In: *At. Data and Nucl. Data. Tables* 52 (1992), S. 227
- [PGW01] PAULUS, G. G. ; GRASBON, F. ; WALTHER, H.: Channel-closing-induced resonances in the above-threshold ionization plateau. In: *Phys. Rev. A* 64 (2001), S. 021401
- [PM96] PLUMMER, M. ; MCCANN, J.F.: Field-ionization rates of the hydrogen molecular ion. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 29 (1996), Nr. 20, S. 4625–4640
- [PNX<sup>+</sup>94] PAULUS, G. G. ; NICKLICH, W. ; XU, Huale ; LAMBROPOULOS, P. ; WALTHER, H.: Plateau in above threshold ionization spectra. In: *Phys. Rev. Lett.* 72 (1994), Nr. 18, S. 2851
- [RCA<sup>+</sup>04] RUDATI, J. ; CHALOUPKA, J. L. ; AGOSTINI, P. ; KULANDER, K. C. ; DIMAURO, L. F.: Multiphoton Double Ionization via Field-Independent Resonant Excitation. In: *Phys. Rev. Lett.* 92 (2004), S. 203001
- [Reg62] VAN REGEMORTER, H.: Rate of Collisional Excitation in Stellar Atmospheres. In: *Astrophys. J.* 136 (1962), S. 906

- [RF76] RAHMAN, N.K. ; FAISAL, F.H.M.: Excitation of metastable hydrogen by simultaneous collision with electrons and photons. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 9 (1976), Nr. 10, S. L275–L277
- [RFZ<sup>+</sup>04] RUDENKO, A. ; FEUERSTEIN, B. ; ZROST, K. ; DE JESUS, V.L.B. ; ERGLER, T. ; SCHRÖTER, C.D. ; MOSHAMMER, R. ; ULLRICH, J.: Fragmentation dynamics of molecular hydrogen in strong ultrashort laser pulses. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, submitted (2004)
- [Roe] ROENTDEC. <http://www.roentdec.com/>
- [RZF<sup>+</sup>04] RUDENKO, A. ; ZROST, K. ; FEUERSTEIN, B. ; DE JESUS, V.L.B. ; SCHRÖTER, C.D. ; MOSHAMMER, R. ; ULLRICH, J.: Correlated multi-electron dynamics in ultrafast laser pulse-atom interactions. In: *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004), S. 253001
- [RZS<sup>+</sup>04] RUDENKO, A. ; ZROST, K. ; SCHRÖTER, C.D. ; DE JESUS, V.L.B. ; FEUERSTEIN, B. ; MOSHAMMER, R. ; ULLRICH, J.: Resonant structures in the low-energy electron continuum for single ionization of atoms in the tunnelling regime. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 37 (2004), Nr. 24, S. L407–L413
- [SFH00] SÄNDIG, K. ; FIGGER, H. ; HÄNSCH, T. W.: Dissociation Dynamics of H<sub>2</sub><sup>+</sup> in Intense Laser Fields: Investigation of Photofragments from Single Vibrational Levels. In: *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000), Nr. 23, S. 4876
- [SKWH80] SALA, K. L. ; KENNEDY-WALLACE, G. A. ; HALL, G. E.: Cw autocorrelation measurement of picosecond laser pulses. In: *IEEE J. Quant. Elec.* QE16 (1980), S. 990
- [SLS<sup>+</sup>95] STINGL, A. ; LENZNER, M. ; SPIELMANN, C. ; KRAUSZ, F. ; SZIPOCS, R.: Sub-10-fs mirror-dispersion-controlled Ti:sapphire laser. In: *Opt. Lett.* 20 (1995), S. 602
- [SM85] STRICKLAND, D. ; MOUROU, G.: Compression of amplified chirped optical pulses. In: *Opt. Comm.* 56 (1985), S. 219
- [SR86] SZÖKE, A. ; RHODES, C. K.: Theoretical model of inner-shell excitation by outer-shell electrons. In: *Phys. Rev. Lett.* 56 (1986), Nr. 7, S. 720

- [SYDK93] SCHAFFER, K. J. ; YANG, Baorui ; DIMAURO, L. F. ; KULANDER, K. C.: Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. In: *Phys. Rev. Lett.* 70 (1993), Nr. 11, S. 1599
- [TL04] TONG, X. M. ; LIN, C. D.: Time-resolved sequential double ionization of  $D_2$  molecules in an intense few-cycle laser pulse. In: *Phys. Rev. A* 70 (2004), S. 023406
- [TRS99] TRUMP, C. ; ROTTKE, H. ; SANDNER, W.: Multiphoton ionization of dissociating  $D_2^+$  molecules. In: *Phys. Rev. A* 59 (1999), Nr. 4, S. 2858
- [TSS84] TOMLINSON, W. J. ; STOLEN, R. H. ; SHANK, C. V.: Compression of optical pulses chirped by self-phase modulation in fibers. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 1 (1984), Nr. 2, S. 139
- [TTT<sup>+</sup>97] THOMPSON, M.R. ; THOMAS, M.K. ; TADAY, P.F. ; POSTHUMUS, J.H. ; LANGLEY, A.J. ; FRASINSKI, L.J. ; CODLING, K.: One and two-colour studies of the dissociative ionization and Coulomb explosion of IMG with intense Ti:sapphire laser pulses. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 30 (1997), Nr. 24, S. 5755–5772
- [TZL03a] TONG, X. M. ; ZHAO, Z. X. ; LIN, C. D.: Correlation dynamics between electrons and ions in the fragmentation of  $D_2$  molecules by short laser pulses. In: *Phys. Rev. A* 68 (2003), S. 043412
- [TZL03b] TONG, X. M. ; ZHAO, Z. X. ; LIN, C. D.: Probing Molecular Dynamics at Attosecond Resolution with Femtosecond Laser Pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 91 (2003), Nr. 23, S. 233203
- [UMD<sup>+</sup>03] ULLRICH, J. ; MOSHAMMER, R. ; DORN, A. ; DÖRNER, R. ; SCHMIDT, L.Ph.H ; SCHMIDT-BÖCKING, H.: Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes. In: *Reports on Progress in Physics* 66 (2003), Nr. 9, S. 1463–1545
- [US03] ULLRICH, J. ; SHEVELKO, V. P.: *Atomic, optical an plasma physics*. Bd. 35: *Many- particle quantum dynamics in atomic an molecular fragmentation*. Springer Heidelberg, 2003
- [VVF96] VERNER, D. A. ; VERNER, E. M. ; FERLAND, G. J.: Atomic Data for Permitted Resonance Lines of Atoms and Ions from H to Si, and S, Ar, Ca, and Fe. In: *AT. Data and Nulc. Data Tables* 64 (1996), S. 1

- [WHH<sup>+</sup>91] WEHLITZ, R. ; HEISER, F. ; HEMMERS, O. ; LANGER, B. ; MENZEL, A. ; BECKER, U.: Electron-energy and -angular distributions in the double photoionization of helium. In: *Phys. Rev. Lett.* 67 (1991), Nr. 27, S. 3764
- [WIC97] WALSH, T.D.G. ; ILKOV, F.A. ; CHIN, S.L.: The dynamical behaviour of IMG and IMG in a strong, femtosecond, titanium:sapphire laser field. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 30 (1997), Nr. 9, S. 2167–2175
- [WMS<sup>+</sup>00] WILLIAMS, I.D. ; MCKENNA, P. ; SRIGENGAN, B. ; JOHNSTON, I.M.G. ; BRYAN, W.A. ; SANDERSON, J.H. ; EL-ZEIN, A. ; GOODWORTH, T.R.J. ; NEWELL, W.R. ; TADAY, P.F. ; LANGLEY, A.J.: Fast-beam study of H<sub>2</sub><sup>+</sup> ions in an intense femtosecond laser field. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 33 (2000), Nr. 14, S. 2743–2752
- [WMY<sup>+</sup>93] WALKER, B. ; MEVEL, E. ; YANG, Baorui ; BREGER, P. ; CHAMBARET, J. P. ; ANTONETTI, A. ; DIMAURO, L. F. ; AGOSTINI, P.: Double ionization in the perturbative and tunneling regimes. In: *Phys. Rev. A* 48 (1993), Nr. 2, S. 894
- [WSD<sup>+</sup>94] WALKER, B. ; SHEEHY, B. ; DIMAURO, L. F. ; AGOSTINI, P. ; SCHAFER, K. J. ; KULANDER, K. C.: Precision Measurement of Strong Field Double Ionization of Helium. In: *Phys. Rev. Lett.* 73 (1994), Nr. 9, S. 1227
- [WVTM03] WASSAF, Joseph ; VÉNIARD, Valérie ; TAÏEB, Richard ; MAQUET, Alfred: Roles of resonances and recollisions in strong-field atomic phenomena: Above-threshold ionization. In: *Phys. Rev. A* 67 (2003), S. 053405
- [WWHC03] WIEHLE, Rolf ; WITZEL, Bernd ; HELM, Hanspeter ; CORMIER, Eric: Dynamics of strong-field above-threshold ionization of argon: Comparison between experiment and theory. In: *Phys. Rev. A* 67 (2003), S. 063405
- [WWS<sup>+</sup>00a] WEBER, Th. ; WECKENBROCK, M. ; STAUDTE, A. ; SPIELBERGER, L. ; JAGUTZKI, O. ; MERGEL, V. ; AFANEH, F. ; URBASCH, G. ; VOLLMER, M. ; GIESSEN, H. ; DÖRNER, R.: Recoil-Ion Momentum Distributions for Single and Double Ionization of Helium in Strong Laser Fields. In: *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000), Nr. 3, S. 443

- [WWS<sup>+</sup>00b] WEBER, Th. ; WECKENBROCK, M. ; STAUDTE, A. ; SPIELBERGER, L. ; JAGUTZKI, O. ; MERGEL, V. ; AFANEH, F. ; URBASCH, G. ; VOLLMER, M. ; GIESSEN, H. ; DÖRNER, R.: Sequential and nonsequential contributions to double ionization in strong laser fields. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 33 (2000), Nr. 4, S. L127–L133
- [YAF<sup>+</sup>04] YAMAKAWA, K. ; AKAHANE, Y. ; FUKUDA, Y. ; AOYAMA, M. ; N. INOUE, H. U. ; UTSUMI, T.: Many-Electron Dynamics of a Xe Atom in Strong and Superstrong Laser Fields. In: *Phys. Rev. Lett.* 92 (2004), Nr. 12, S. 123001
- [YZB96] YU, Hengtai ; ZUO, Tao ; BANDRAUK, André D.: Molecules in intense laser fields: Enhanced ionization in a one-dimensional model of H<sub>2</sub>. In: *Phys. Rev. A* 54 (1996), Nr. 4, S. 3290
- [YZS<sup>+</sup>03] YAMANE, K. ; ZHANG, Z. ; SUGURO, A. ; MORITA, R. ; YAMASHITA, M.: Generation and characterization of 3.4-fs optical pulses with over-octave bandwidth. In: *Ultrafast optics IV*, 2003, S. W2 12:15
- [ZB93] ZUO, T. ; BANDRAUK, A. D.: Charge-resonance-enhanced ionization of diatomic molecular ions by intense lasers. In: *Phys. Rev. A* 52 (1993), Nr. 4, S. 2511



## Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all denjenigen danken, die mich während meiner Doktorarbeit unterstützt haben. Besonderer Dank geht an Vitor, Artem und Thorsten, mit denen ich in dieser Zeit immer gut zusammenarbeiten konnte. Außerdem danke ich Robert und Joachim Ullrich, die viel zu dieser Arbeit beitrugen und sie mir erst ermöglichten.

Zum Schluss ist zu sagen, dass es aufgrund der Atmosphäre in der Gruppe, an der jeder einzelne seinen Anteil hatte, eine wirklich schöne Zeit war.

