# Atomare Prozesse in starken Laserfeldern

Dissertation der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von
Jan Felix Grasbon
aus Weilheim i.Obb.

München, den 15.10.2001

1. Gutachter: Prof. Dr. H. Walther

2. Gutachter: Prof. Dr. D. Habs

Tag der mündlichen Prüfung: 19. Dezember 2001

# Zusammenfassung

Die sprunghafte Entwicklung in der Femtosekundenlasertechnologie Anfang der 90er Jahre ermöglicht es, laserphysikalische Experimente in den verschiedensten Bereichen der Naturwissenschaften bei Pulsdauern von einigen Femtosekunden und elektrischen Feldstärken in der Größenordnung inneratomarer Felder durchzuführen. Im Rahmen dieser Arbeit wurden die drei wichtigsten Prozesse im Bereich der Wechselwirkung von Atomen mit starken Laserfeldern untersucht:

Im Fall der *Above-threshold Ionisation (ATI)* absorbiert ein Elektron aus dem Lichtfeld mehr Photonen, als zu seiner Ionisation notwendig sind. Die Überschussenergie kann mit einem Flugzeitspektrometer in Form der kinetischen Energie des Photoelektrons gemessen werden. Im ATI-Spektrum wird die Zahl der gemessenen Photoelektronen als Funktion ihrer Energie aufgetragen: Es ergibt sich eine Serie von Maxima im Abstand der Photonenenergie. Diese fallen mit steigender Photoelektronenenergie stark ab und entsprechen der Anzahl der jenseits der Ionisationsschwelle absorbierten Photonen. Die Form der Spektren gibt detaillierte Hinweise auf Einzelheiten des Ionisationsvorgangs. Zum Beispiel misst man für lineare Polarisation des eingestrahlten Lichts eine plateauartige Struktur, die durch einen Rückstreuprozess des Elektrons am Ionenrumpf hervorgerufen wird: Die Einhüllende des ATI-Spektrums folgt zunächst dem störungstheoretisch erwarteten starken Abfall für niedrige Elektronenenergien. Sie geht dann in das ATI-Plateau über, bis sie am sogenannten Cutoff endgültig stark abfällt.

Neben dem Ionisationsprozess beobachtet man bei der Wechselwirkung von Atomen mit intensiven Laserfeldern auch die *Erzeugung hoher Harmonischer* (high harmonic generation, *HHG*). Dabei emittieren die Atome Strahlung mit Photonenenergien, die einem Vielfachen der Energie der eingestrahlten Photonen entsprechen. Aufgrund der Inversionssymmetrie werden im Gas nur die Harmonischen ungerader Ordnung erzeugt. HHG kann durch Elektronen erklärt werden, die - statt wie bei ATI am Ionenrumpf zu streuen, rekombinieren und auf diese Weise die aus dem Laserfeld aufgenommene Energie in Form von hochenergetischer Strahlung abgeben. Auch im Spektrum der Harmonischen fand man ein Plateau, das sich bis in den Bereich weicher Röntgenstrahlung erstrecken kann. HHG erlaubt es damit, vergleichsweise effizient kohärente kurzwellige Strahlung zu erzeugen, die vielversprechende Anwendungen ermöglicht, zum Beispiel in der Biologie (Mikroskopie).

Als dritte Möglichkeit kann das Elektron seine während des Ionisationsprozesses gewonnene Energie dazu benutzen, ein zweites Elektron aus dem Atom zu lösen. Dies wird *nicht-sequentielle Doppelionisation (NSDI)* genannt und beinhaltet hochinteressante korrelierte Ionisationsdynamik.

Für die Experimente dieser Arbeit wurde ein hochrepetitives (100kHz) Lasersystem aufgebaut, das bei einer Pulsenergie von 6$\mu$J und einer Pulsdauer von 50fs Spitzenintensitäten von $2 \cdot 10^{14}$W/cm$^2$ erzeugt. Für Messungen in diesem Intensitätsbereich wurde ein kombiniertes Elektronen- und Ionen-Flugzeitspektrometer sowie ein Vakuum-UV-Spektrometer konstruiert. Ersteres wurde im Rahmen dieser Arbeit aufgebaut und erlaubt die gleichzeitige Messung von Elektronen und Ionen. Das XUV-Spektrometer wurde im Rahmen dieser Arbeit umgebaut und erstmals zur Messung hoher Harmonischer eingesetzt.

Bei einer Repetitionsrate von 100kHz sind sehr detaillierte Analysen des Ionisationsprozesses möglich. So wurde eine vergleichende Studie zum Einfluß der Elliptizität des einfallenden Lichtfeldes auf die drei oben genannten Effekte durchgeführt. Elliptisch polarisiertes Licht beschleunigt das Elektron in *zwei* Raumrichtungen. Mit zunehmender Elliptizität verringert sich die Wahrscheinlichkeit, dass das Elektron während des Ionisationsprozesses zum Ionenrumpf zurückkehrt und damit auch die Effizienz von ATI, HHG und NSDI. Ihre Abhängigkeit von der Elliptizität wurde unter nahezu identischen experimentellen Bedingungen gemessen. Die Messung bestätigt die gemeinsame Wurzel der drei Prozesse. Der Einfluß der Polarisation auf die Bahn des Elektrons kann in einem einfachen klassischen Modell beschrieben werden, das die gemessene Abhängigkeit näherungsweise reproduziert.

Ein Durchbruch in der theoretischen Beschreibung von Prozessen in starken Feldern gelang Lewenstein et. al. mit vom Feynman'schen Pfadintegral abgeleiteten Gleichungen. Der klassische Limes dieser Theorie ist das oben erwähnte klassische Modell. Beide erlauben eine intuitive Deutung der physikalischen Vorgänge mit Hilfe von räumlichen Trajektorien bzw. Quantentrajektorien, die das Elektron aufgrund der Wechselwirkung mit dem Feld nehmen kann. Im ATI-Experiment ist es uns dabei gelungen, unter bestimmten Bedingungen ein ATI-Spektrum in die Beiträge von einzelnen Paaren von Quantentrajektorien zu zerlegen.

Führen mehrere Quantentrajektorien zum gleichen Endzustand des Elektrons, so können sie miteinander interferieren. Die Interferenz von Quantentrajektorien beeinflusst die Form der ATI-Spektren auf verschiedenste Art. Dies zeigt zum einen die Messung der

Interferenz niederenergetischer Elektronen und rückgestreuter hochenergetischer Elektronen. Eine Voraussetzung für ihre Interferenz mit messbarem Kontrast ist eine vergleichbare Amplitude in den entsprechenden Termen der Wellenfunktion. Im Plateau-Bereich der Photoelektronenspektren ist dies für kleine elliptische Polarisation des Lichts erfüllt, da dann, wie schon erwähnt, der Rückstreuvorgang abgeschwächt wird. Die Interferenz der beiden Beiträge zeigt sich in der Winkelverteilung der Photoelektronen dadurch, dass sich das ATI-Plateau aufgrund der Interferenz aufspaltet.

Ein zweites Beispiel für den Einfluss von Interferenzeffekten betrifft die Form der Einhüllenden eines ATI-Spektrums. Diese wird durch resonanzartig auftretende Effekte bei bestimmten Intensitäten dominiert. Die Dynamik in der Ausbildung des ATI-Plateaus wurde durch die detaillierte Messung der Intensitätsabhängigkeit der ATI-Spektren untersucht. Dazu wurde in kleinen Schritten die Intensität erhöht und die dazugehörigen Spektren aufgenommen. Die resonanzartigen Effekte treten gerade bei solchen Intensitäten auf, bei denen die Theorie eine große Anzahl von Quantentrajektorien braucht, um das Spektrum zu approximieren. Daraus kann man auf konstruktive Interferenz der beteiligten Trajektorien schließen.

Ein völlig neuer Bereich der Wechselwirkung ultrakurzer Pulse mit Atomen eröffnet sich bei Pulslängen um oder kürzer als 5fs. Solche Pulse bestehen aus weniger als zwei optischen Zyklen (FWHM). Dadurch wird die Phase zwischen der Einhüllenden des Pulses und seiner Trägerwelle von Bedeutung (*absolute Phase*). Da alle Effekte, die durch intensive Laserfelder hervorgerufen werden, vom Verlauf des elektrischen Feldes des Laserpulses abhängen, hängen sie auch von der absoluten Phase ab. Dies ist von entscheidender Bedeutung für verschiedene moderne Forschungsbereiche wie die Erzeugung von Attosekundenpulsen, die kohärente Steuerung atomarer und molekularer Prozesse, die Laserplasmaphysik aber auch die Entwicklung optischer Frequenzstandards.

An der Politecnico di Milano haben wir mit einem 5fs-Lasersystem erstmals Effekte der absoluten Phase nachweisen können. Dies wurde durch eine Korrelationsanalyse der in entgegengesetzte Raumrichtungen emittierten Photoelektronen erreicht.

# Inhaltsverzeichnis


**1 Einleitung und Kapitelübersicht** **1**

1.1 Mehrphotonen- und Above-threshold Ionisation . . . . . 2

1.2 Nicht-sequentielle Doppelionisation . . . . . 5

1.3 Erzeugung hoher Harmonischer . . . . . 6

1.4 Kapitelübersicht . . . . . 8

**2 Experimenteller Aufbau** **9**

2.1 Lasersystem . . . . . 10

2.2 Flugzeitspektrometer für Elektronen und Ionen . . . . . 13

2.3 XUV-Spektrometer . . . . . 16

2.4 Die Parameter im Experiment . . . . . 23

**3 Das klassische Modell** **25**

3.1 Das freie Elektron im oszillierenden elektrischen Feld . . . . . 26

3.2 Das Mehrstufenmodell . . . . . 27

3.3 Semiklassisches Modell für elliptische Polarisation . . . . . 31

**4 Keldysh-Theorie** **35**

4.1 Verallgemeinertes Keldysh-Matrixelement . . . . . 36

4.2 Darstellung mit Pfadintegralen . . . . . 39

4.3 Atomares Dipolmoment . . . . . 41

4.4 Quantentrajektorien . . . . . 43

**5 Messung der Abhängigkeit der Above-threshold Ionisation, der Erzeugung hoher Harmonischer und der nicht-sequentiellen Doppelionisation von der Elliptizität des Laserpulses 45**

**6 Identifikation von Quantentrajektorien im Experiment 51**

**7 Interferenz von direkten und rückgestreuten Elektronen 55**

**8 Interferenz rückgestreuter Elektronen 61**

**9 Above-threshold Ionisation mit 6fs-Pulsen 69**

9.1 Das klassische Modell bei einer Pulslänge von 6fs . . . . . 70

9.2 Above-threshold Ionisation bei Pulsdauern von wenigen optischen Zyklen 73

9.3 Die absolute Phase und Above-threshold Ionisation . . . . . 73

9.4 Ausblick . . . . . 76

**Literaturverzeichnis 77**

# Kapitel 1

# Einleitung und Kapitelübersicht

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Wechselwirkung von Atomen mit intensiven, ultrakurzen Laserpulsen. Dabei setzt man Atome elektromagnetischen Feldern aus, die eine Feldstärke aufweisen, die mit inneratomaren Feldstärken vergleichbar ist. Untersucht werden hier die Elementarprozesse der Photoionisation und der Erzeugung harmonischer Frequenzen des eingestrahlten Laserlichts. Im Experiment werden Laserpulse in einen Gasstrahl fokussiert und anschließend die Wechselwirkungsprodukte detektiert, die aus der Wechselwirkung hervorgehen: Photoelektronen, Ionen und harmonische Photonen, d.h. Photonen, die ein Vielfaches der eingestrahlten Photonenenergie aufweisen.

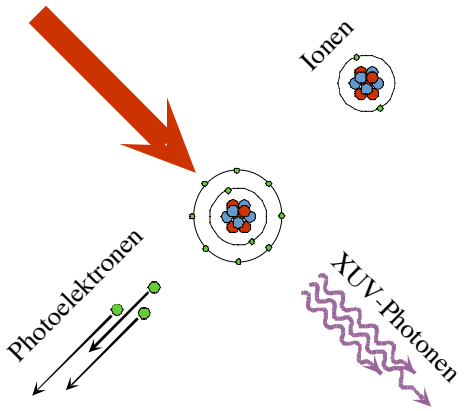


Abbildung 1.1: Bei Bestrahlung von Atomen mit intensiven Laserpulsen entstehen Photoelektronen, Ionen und harmonische Photonen.

Ursprünglich wurden diese drei Wechselwirkungsprodukte in unabhängigen experimentellen Aufbauten untersucht, und interessanterweise wurde bei jedem ein charakteristischer Effekt entdeckt: die *Above-threshold Ionisation* (ATI) für die Photoelektronen,

die *nicht-sequentielle Doppelionisation* (NSDI) für doppelt geladene Ionen und die *Erzeugung hoher harmonischer Photonen* (HHG). Die Erzeugung von elektrischen Feldern in der Größenordung der atomaren Feldstärke $F_0 = 5.14{\cdot}10^{11}$V/m, d.h. der Feldstärke, mit der das Elektron im Grundzustand des Wasserstoffs gebunden ist, war Voraussetzung für das Studium dieser drei wichtigen Effekte. Die Verkürzung der Pulsdauer auf wenige Femtosekunden (1fs=$1{\cdot}10^{-15}$s) und eine Pulsenergie von einigen Joule ermöglicht heute Spitzenintensitäten über $1{\cdot}10^{20}$W/cm$^2$ bei niedrigen Repetitionsraten. Alternativ besteht aber auch die Möglichkeit, hohe Repetitionsraten von einigen hundert Kilohertz bei Spitzenintensitäten von einigen $10^{14}$W/cm$^2$ zu verwirklichen. Ein solches hochrepetitives 100kHz-Lasersystem mit 50fs Pulslänge wird hier verwendet. Die hohe Re/-pe/-ti/-tions/-ra/-te ist für eine detaillierte Studie der Wechselwirkung unter gezielter Variation von Parametern wie der Polarisation und der Intensität des Lichtfeldes oder auch der Emis/-sions/-rich/-tung der Photoelektronen essentiell. Dabei ist die geringe Spitzenintensität nicht von Nachteil, da bei dieser Pulslänge eine höhere Intensität nur dazu führen würde, dass die zu untersuchenden Prozesse bereits in der ansteigenden Pulsflanke und nicht am Pulsmaximum stattfänden. Dieses als "Sättigung" bezeichnete Problem kann nur durch noch kürzere Pulse mit entsprechend kurzer Anstiegszeit des elektrischen Feldes umgangen werden.

## 1.1 Mehrphotonen- und Above-threshold Ionisation

Die Erfindung des Lasers führte 1965 zur Entdeckung der Mehrphotonenionisation [1]. Die Photonenenenergie $\hbar\omega$ ist dabei kleiner als die Ionisationsschwelle $I_p$. Ein Elektron wird von einem gebundenen Zustand (hier im allgemeinen der Grundzustand ) ins Kontinuum gebracht, indem es die für die Ionisation notwendige Anzahl $N$ Lichtquanten aufnimmt. Die Überschussenergie $N\hbar\omega - I_p$ besitzen die Photoelektronen als kinetische Energie. Diese kann beispielsweise durch die Flugzeit des Elektrons von der Wechselwirkungszone zum Detektor bestimmt werden (Flugzeitspektroskopie). Im Photoelektronenspektrum trägt man die Anzahl der Photoelektronen als Funktion ihrer kinetischen Energie auf.

1979 wude von Agostini et al. eine Messung mit intensiven Laserpulsen (Spitzenintensität von $8{\cdot}10^{12}$W/cm$^2$) bei einer Photonenenergie von $\hbar\omega$ = 2.34eV durchgeführt [2]. Es wurde ein zweites Maximum im Spektrum gefunden, das eine um ein Photon höhere Energie aufweist. Die Aufnahme von Photonen im Ionisationsprozess über die mini-

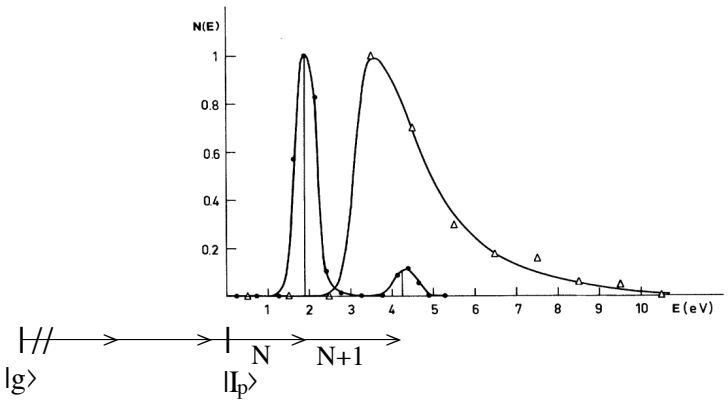


Abbildung 1.2: Entdeckung der Above-threshold Ionisation: Photoelektronenspektrum (Kreise •) bei $8{\cdot}10^{12}$W/cm$^2$. Die beiden Maxima haben einen Abstand, der der Photonenenergie von $\hbar\omega = 2.34$eV entspricht [2]. (Dreiecke △ - Vergleichsmessung bei anderer Wellenlänge und Intensität)

mal zur Ionisation notwendige Anzahl hinaus, wird mit Above-threshold Ionisation (ATI) bezeichnet. Mit steigenden Laserintensitäten und effizienteren Messmethoden wurden weitere ATI-Maxima gefunden. Die Photoelektronenspektren bestehen somit aus einer Serie von ATI-Maxima, die der Anzahl der jenseits der Schwelle absorbierten Photonen entsprechen, deren Stärke aber mit zunehmender Ordnung schnell abfällt.

Bei Intensitäten über $10^{13}$W/cm$^2$ werden in ATI-Spektren unter anderem zwei Effekte beobachtet, die im Rahmen dieser Arbeit von Bedeutung sind: die Rotverschiebung der ATI-Maxima [3] mit zunehmender Laserintensität und die sogenannten 'Freeman'-Resonanzen [4]. Die Rotverschiebung erklärt sich dadurch, dass ein Photoelektron im Kontinuum die Zitterenergie im oszillierenden elektrischen Feld des Lasers, die sogenannte ponderomotive Energie $U_p$ haben muss. Deshalb ist zur Ionisation nicht nur die Ionisationsenergie, sondern auch die ponderomotive Energie erforderlich. Eine äquivalente Beschreibung liefert die AC-Stark-Verschiebung der Ionisationsschwelle um genau die ponderomotive Energie $U_p$. $U_p$ ist proportional zur Laserintensität, wodurch sich die Verschiebung der ATI-Maxima zu kleineren Energien mit zunehmender Laserintensität erklärt. Ist die ponderomotive Energie größer als die Photonenenergie, werden die niedrigsten ATI-Maxima unterdrückt. Man spricht vom 'Schließen von Ionisationskanälen' (channel closing). Zwischen den ersten ATI-Maxima im Photonenabstand wurden zusätzliche Strukturen in den Spektren beobachtet, die der Ionisation von angeregten Zuständen des Atoms zugeordnet werden konnten. Diese geraten während des Anstiegs der Intensität in Resonanz mit virtuellen Zuständen von Mehrphotonenübergängen. Ent-

sprechend steigt die Ionisationsrate stark an (resonanced enhanced multiphoton ionization, REMPI). Die dazugehörige Struktur in den ATI-Spektren ist unter dem Begriff der Freeman-Resonanzen bekannt.

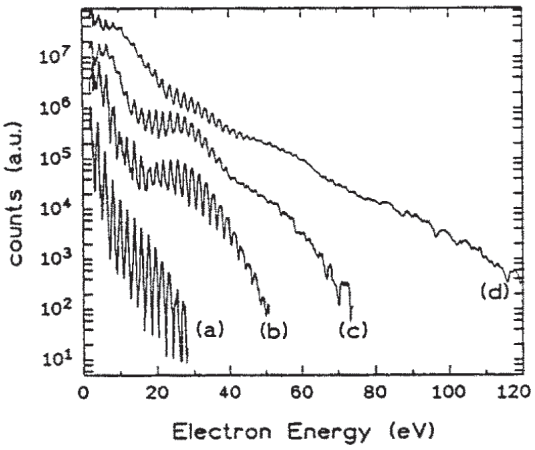


Abbildung 1.3: ATI-Spektren in Argon bei vier Intensitäten: (a) $6{\cdot}10^{13}$W/cm$^2$, (b) $1.2{\cdot}10^{14}$W/cm$^2$, (c) $2.4{\cdot}10^{14}$W/cm$^2$, (d) $4.4s{\cdot}10^{14}$W/cm$^2$, $\tau$ = 40fs, $\lambda$ = 630nm [5]. Mit zunehmender Intensität erkennt man deutlich, wie sich an den steilen Abfall bei niedrigen Photoelektronenenergien ein Bereich mit nahezu konstanter Zählrate anschliesst.

**Das Plateau bei ATI**

Bei sehr hohen Intensitäten (>$5{\cdot}10^{13}$W/cm$^2$) schliesst sich an den intuitiv erwarteten Abfall ein Bereich an, in dem die Höhe der ATI-Maxima annähernd unabhängig von der Ordnung ist. Dieses sogenannte ATI-Plateau wurde erstmals von Paulus et al. 1994 gemessen [5]. Am Ende des Plateaus, man spricht von seinem Cutoff, fallen die ATI-Maxima mit zunehmender Energie wiederum stark ab. Abb. 1.3 zeigt vier ATI-Spektren gemessen mit zunehmenden Intensitäten. Deutlich erkennt man, wie sich das Plateau ausbildet und sich zu immer höheren Photoelektronenenergien erstreckt.

ATI-Spektren werden bei sehr niedrigem Druck (<$1{\cdot}10^{-5}$mbar) aufgenommen. Es finden also nur Wechselwirkungen der Feldes mit einzelnen von einander unabhängigen Atomen statt. Dies ermöglicht eine - im Vergleich zu HHG, bei der immer auch makroskopische Vorgänge beteiligt sind - einfache Interpretation der ATI-Spektren. Allerdings ist bei den ATI-Spektren der sogenannte Volumeneffekt zu berücksichtigen, da im Fokus aufgrund des raum-zeitlichen Intensitätsprofils immer Bereiche mit unterschiedlichen Intensitäten vorliegen. So setzt sich ein ATI-Spektrum aus den Beiträgen aller Intensitäten - kleiner der maximalen Intensität im Fokus - zusammen. Aufgrund der großen Nichtlinearität des Ionisationsprozesses trägt unterhalb der Sättigungsintensität nur ein kleines Volumen mit den höchsten Intensitäten bei.

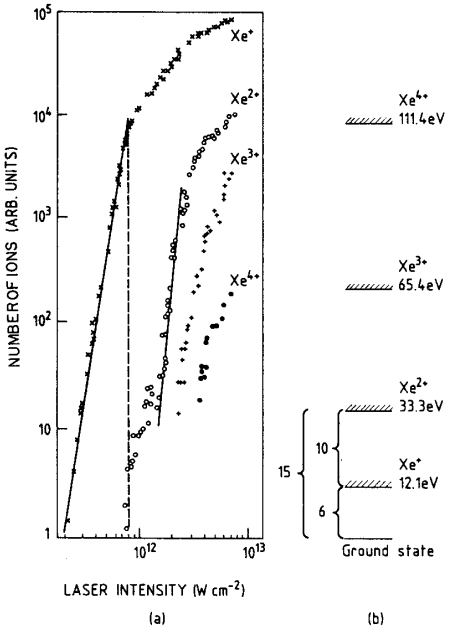


Abbildung 1.4: (a) Doppelt logarithmisch aufgetragenes Ionensignal für Xenon in Abhängigkeit von der Intensität [7]. Die gestrichelte Linie entspricht der Sättigungsintensität, bei der sich die Raten für $Xe^{+}$ und $Xe^{2+}$ markant ändern. (b) Ionisationsenergien

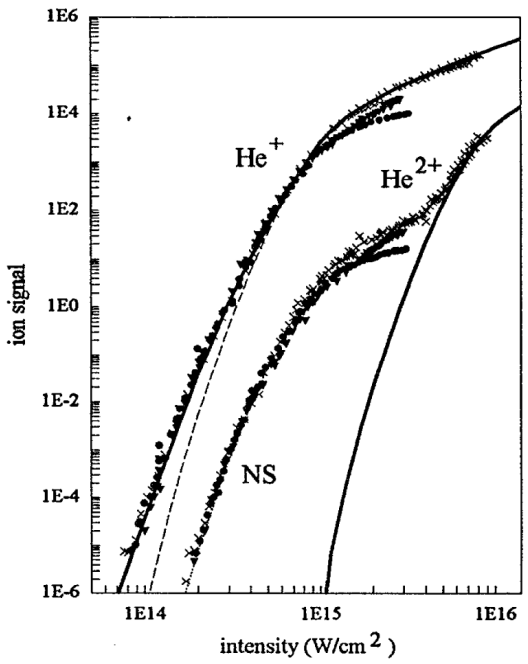


Abbildung 1.5: Gemessenes Ionensignal für Helium bei linearer Polarisation, $\tau$ =100fs und $\lambda$ = 780nm [11]. Berechnete $He^{+}$-Signal: numerische Lösung der TDSE (durchgezogen), ADK-Tunnelrate (gestrichelt); $He^{2+}$-Signal aus ADK-Tunnelrate (durchgezogen).

## 1.2 Nicht-sequentielle Doppelionisation

Mit der Flugzeitspektroskopie konnten neben der kinetischen Energie der Elektronen auch die Ladungszustände der ionisierten Atome bestimmt werden. 1982 veröffentlichten l'Huillier et al. Messungen der Ionisationsraten in Abhängigkeit von der Intensität für einfach und mehrfach ($A \rightarrow A^{n+} + n\ e^{-}$) geladene Edelgasionen [6, 7]. Abb. 1.4(a) zeigt die Messung in Xenon mit 50ps langen Laserpulsen und Spitzenintensitäten bis zu $1{\cdot}10^{14}$W/cm$^2$ bei einer Wellenlänge von1064nm. In diesen Experimenten setzt Doppelionisation bei überraschend niedrigen Intensitäten ein, d.h. die Doppelionisationswahrscheinlichkeit bei geringer Intensität ist höher als für den sequentiellen Prozess ($A \rightarrow A^{+} + e^{-}$; $A^{+} \rightarrow A^{2+} + e^{-}$) zu erwarten wäre (nicht-sequentielle Doppelionisation, NSDI). Die Trennung in einen nicht-sequentiellen ($A \rightarrow A^{2+} + 2\,e^{-}$) und einen sequentiellen Bereich in der Doppelionisation wird durch das sogenannte "Knie" in den Messungen deutlich. L'Huillier et al. konnten das Verhalten der Einfach- und Doppelionisation in ei-

nem störungstheoretischen Modell mit Hilfe von Ratengleichungen reproduzieren, indem sie den nicht-sequentiellen Prozess in einer eigenen Ratengleichung berücksichtigten [8]. Allerdings zeigte Lambropoulos 1985, dass die aus dem Experiment gewonnenen Wirkungsquerschnitte für NSDI um viele Größenordnungen von Abschätzungen abwich, die durch Skalierungsargumente gewonnen wurden [9]. Der störungstheoretische Zugang zur NSDI war also falsch.

1993 wurden die ersten Elliptizitätsverteilungen der Ionisationsraten gemessen [10]. Es zeigte sich eine - im Vergleich zur sequentiellen Ionisation - viel stärkere Abhängigkeit der nicht-sequentiellen Ionisation von der Ellipitizität des einfallenden Laserpulses und ein vollkommenes Verschwinden des Signals bei zirkularer Polarisation. Dies war ebenfalls ein Hinweis dafür, dass NSDI ein eigener Ionisationsmechanismus zugrunde liegt. Eine Messung von Walker et al. (Abb. 1.5) erlaubte einen Vergleich mit theoretischen Modellen über 11 Größenordnungen und zeigte erneut die starke Abweichung von der rein sequentiellen Ionisation [11]. Als mögliche Theorien für den nicht-sequentiellen Prozess wurden das "Shake-off" Modell von Fittinghoff et al. [12], das sich an die Doppelionisation mit weichen Röntgenstrahlen anlehnt, sowie verschiedene Ansätze zur Stoßionisation [13, 14] und kollektiven Tunnelionisation [15] vorgeschlagen. Neben der schon erwähnten Elliptizitätsabhängigkeit können diese theoretischen Modelle seit kurzem an aktuellen Messungen der Impulsverteilungen der bei der Ionisation entstehenden Teilchen [16, 17, 18] getestet werden.

## 1.3 Erzeugung hoher Harmonischer

Parallel zur Messung der totalen Ionisationsraten und zur Flugzeitspektroskopie der Elektronen wurde Ende der 80er Jahre auch die Erzeugung von Harmonischen der einfallenden fundamentalen Wellenlänge in Edelgasen untersucht. Im Photonenbild entspricht dies der Absorption von $n$ Photonen der Energie $\hbar\omega$ und der Emission eines Photons mit der höheren Energie $n \cdot \hbar\omega$. Im Experiment werden aus Paritätsgründen nur ungerade Vielfache der Harmonischen gemessen. Erste Messungen von 1987 und 1988 zeigen die Abbildungen 1.6 und 1.7. Während McPherson et al. die kurze Excimer-Laserwellenlänge (248nm) benutzten und mit Spitzenintensitäten von $1 \cdot 10^{15}$W/cm$^2$ maximal die 17. Harmonische in Neon detektieren konnten [19], hat Ferray et al. die 33. Harmonische in Argon bei nur $3 \cdot 10^{13}$W/cm$^2$ und bei einer Wellenlänge von 1064nm gemessen [20]. Beide Messungen zeigen eine ähnliche Form des Harmonischen-Spektrums, das dem ATI-Spektrum

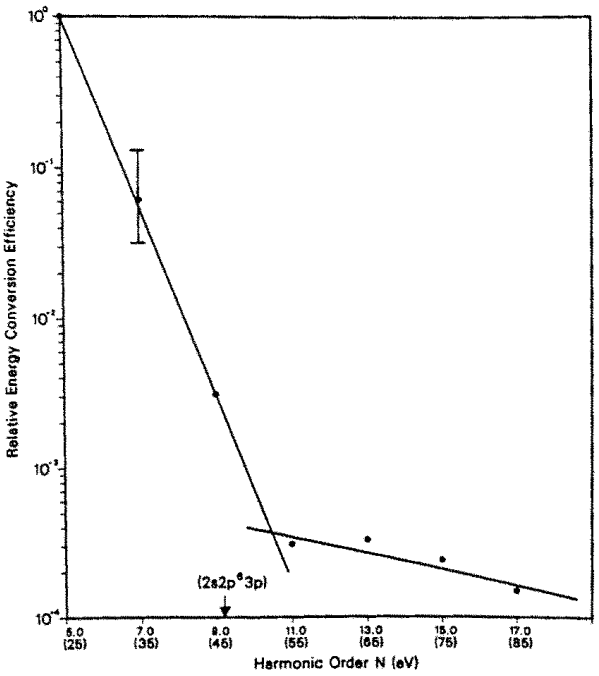


Abbildung 1.6: Harmonischen-Spektrum in Neon [19]. Intensität $1 \cdot 10^{15}$W/cm$^2$, $\tau$ = 1ps, $\lambda$ = 248nm. Das Plateau erstreckt sich bis zur 17. Harmonischen (85eV Photonenenergie).

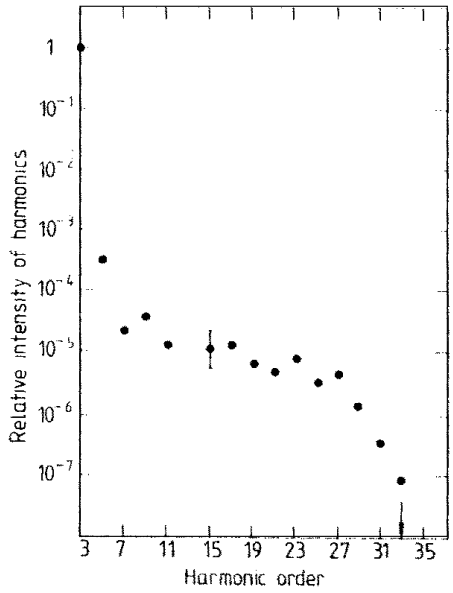


Abbildung 1.7: Harmonischen-Spektrum in Argon [20]. Intensität $3 \cdot 10^{13}$W/cm$^2$, $\tau$ = 30ps, $\lambda$ = 1064nm. Die 13. Harmonische fehlt aufgrund starker Reabsorption im Gas durch Anregung in den 5d-Zustand.

gleicht: Die niedrigen Harmonischen fallen mit zunehmender Ordnung schnell einige Größenordnungen ab. Dann bildet sich wieder ein Plateau mit nur geringer Variation in der Harmonischen-Intensität aus, das erst am Cutoff endgültig stark abfällt. In neuen Messungen mit Helium [21] bei Pulslängen von 5fs und Spitzenintensitäten von $6 \cdot 10^{15}$W/cm$^2$ wurde ein Plateau bis weit über die dreihundertste Ordnung gemessen. Das entspricht einer emittierten XUV-Strahlung bis zu 500eV oder einer Wellenlänge kleiner 2.5nm, sie liegt also im sogenannten Wasserfenster zwischen 2.33nm und 4.37nm unterhalb der K-Absorptionskante von Sauerstoff und oberhalb der von Kohlenstoff.

Das Plateau widerlegte die damals von der Störungstheorie geprägte Vorstellung, die einen Abfall der Emissionswahrscheinlichkeit mit der Potenz der Ordnung der Harmonischen erwartete, eröffnete aber gleichzeitig die Tür zur kontrollierten und vergleichsweise effizienten Erzeugung von kohärenter XUV-Strahlung, die zum Beispiel auch in der Biologie vielversprechende Anwendungen finden kann.

## 1.4 Kapitelübersicht

Im folgenden Kap. 2 werden das Lasersystem und die experimentellen Aufbauten für die Messung von ATI, NSDI und HHG vorgestellt. Anschließend werden in Kap. 3 die drei Effekte im Zusammenhang mit dem sogenannten klassischen Modell erläutert. Kap. 4 stellt die quantenmechanische Version, die Keldysh-Theorie für ATI und HHG, vor.

Die Abhängigkeit der drei Effekte ATI, NSDI und HHG von der Elliptizität des einfallenden Laserpulses wird in einer Messung bei nahezu identischen Bedingungen in Kap. 5 miteinander verglichen. Anschließend werden bereits veröffentlichte Messungen zur ATI vorgestellt. Diese umfassen: (i) die Identifikation von zum ATI-Spektrum beitragenden Trajektorien für elliptische Polarisation in Kap. 6, (ii) die Interferenz zwischen sogenannten direkten und rückgestreuten Elektronen in einer Winkelverteilung in Kap. 7 und (iii) die konstruktive Interferenz aller Trajektorien bei bestimmten Intensitäten in Kap. 8.

In einem abschließenden Kap. 9 werden neueste Messungen an der Politecnico in Mailand diskutiert. Die Pulsdauer von nur 6fs ermöglichte dabei erstmals die Messung eines phasenabhängigen Effektes bei der Photoionisation von Atomen.

# Kapitel 2

# Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau umfasst das Femtosekundenlasersystem, das Flugzeitspektrometer für Photoelektronen und Ionen und das XUV-Spektrometer.

Das Lasersystem besteht aus einem selbstgebauten Oszillator, einem modifizierten Verstärker (RegA) der Firma Coherent und einem eigens entwickelten Prismenkompressor. Es bildet einen sehr stabilen Laser von hervorragender Strahlqualität bei einer Pulslänge von 50fs. Abb. 2.1 zeigt den Aufbau des 50fs-Lasersystems. Es zeichnet sich durch seine hohe Repetitionsrate von 100kHz aus, die im Vergleich zu den konkurrierenden 1kHz-Lasersystemen den Nachweis subtiler Effekte ermöglicht.

Das Elektronen- und Ionen-Spektrometer wurde im Rahmen dieser Arbeit aufgebaut. Design und Datenerfassung basieren auf dem Vorgängerspektrometer und auf der damit gewonnenen Erfahrung in der Flugzeitspektroskopie [24]. Es hat zwei Detektionsarme, so dass Ionen und Elektronen nahezu gleichzeitig mit hoher Zeitauflösung nachgewiesen werden können. Außerdem kann die Apparatur leicht in ein symmetrisches Elektronenspektrometer umgebaut werden, das die simultane Detektion von Elektronen in entgegengesetzten Richtungen für die Untersuchung phasenabhängiger Effekte ermöglicht (Kap. 9).

Das XUV-Spektrometer war die Dissertationsarbeit von F. Zacher [25]. Es wurde im Rahmen dieser Arbeit entsprechend den experimentellen Notwendigkeiten umgebaut und erstmals zur Messung von Harmonischen eingesetzt.

Damit befinden wir uns in der einzigartigen Situation, dass alle drei Phänomene ATI, NSDI und HHG experimentell gleichzeitig unter gleichen Bedingungen mit ein- und demselben Lasersystem untersucht werden können.

## 2.1 Lasersystem

### Oszillator

Der Oszillator erzeugt Bandbreite begrenzte Femtosekundenpulse mit einer Pulslänge von 20fs. Sein 2mm dicker Ti-Saphir Kristall wird von einem Festkörperlaser (Millennia Vi, Spectra Physics) gepumpt. Der Kerr-Linsen-modengekoppelte Resonator ist mehrfach gefaltet und hat eine Länge von knapp zwei Metern und damit eine Repetitionsrate von 78MHz. Drei dispersive Spiegel zusammen mit einem Quarz-Prismenpaar kompensieren die resonatorinterne Dispersion. Die Brewster-Prismen und der Kristall im Brewster-Winkel sorgen für horizontale Polarisation. Das Spektrum und die Autokorrelation der Laserpulse sind in Abb. 2.1 zu sehen. Für die Verstärkung sind ca. 35nm spektrale Breite zentriert um 800nm Voraussetzung. Die interferometrische Autokorrelationshalbwertsbreite von ca. 37fs gibt unter der Annahme einer $\mathrm{sech}^2$-Pulsform eine Pulslänge von unter 20fs. Die ebenfalls hell eingezeichnete untergrundfreie Autokorrelation (FWHM: 30fs) bestätigt dies. Der fs-Oszillator hat eine Leistung von ca. 200mW, von denen 50mW (0.5nJ Pulsenergie) dem regenerativen Verstärker zugeführt werden.

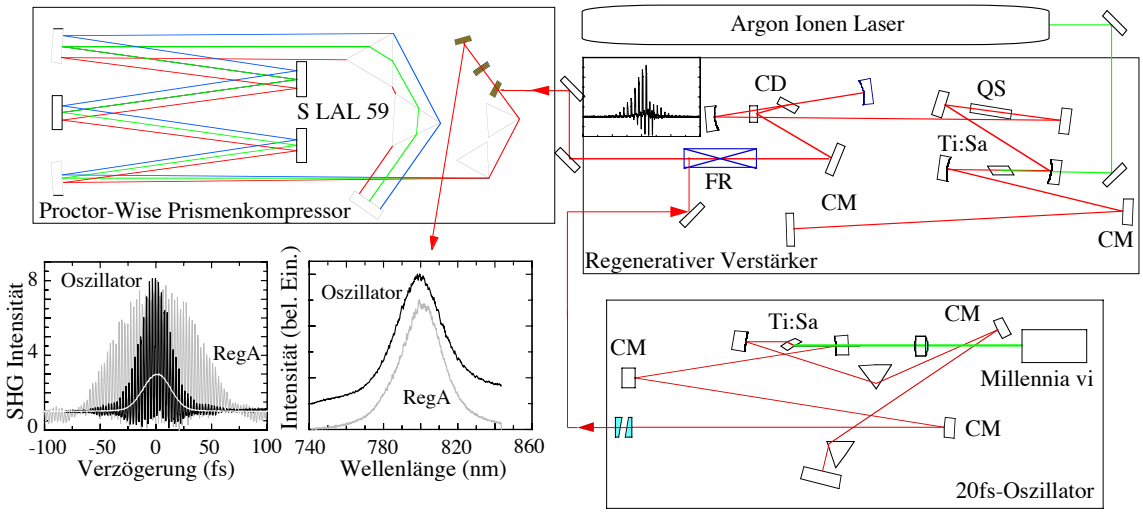


Abbildung 2.1: Das 100kHz-Lasersystem besteht aus einem 20fs-Oszillator, einem regenerativen Verstärker und einem Prismenkompressor in Procter-Wise Konfiguration: Ti:Sa Titan-Saphir Kristall, CM dispersive Spiegel, FR Faraday Rotator, CD Cavity Dumper, QS Q-Switch. Ausserdem sind die Autokorrelationen der Laserpulse vor und nach der Verstärkung mit den dazugehörigen Spektren dargestellt.

Vor der Einkoppelung wird der Oszillatorstrahl richtungsstabilisiert und durchläuft einige Reflexe auf dispersiven Spiegeln (“TOD-Spiegel”, TOD: third order dispersion). Letztere ermöglichen eine Feineinstellung der dritten Ordnung der Dispersion.

### Regenerativer Verstärker

Ein gütegeschalteter Resonator bildet den Verstärker. Gleichzeitig mit dem Öffnen des Q-Switches erfolgt die Einkoppelung des Pulses über den Faraday-Rotator, der zugleich Rückreflexe in den Oszillator verhindert. In den Resonator sind weitere dispersive Spiegel zur Dispersionskontrolle integriert. Nach 16 Umläufen wird der verstärkte Puls ausgekoppelt. Die spektrale Breite ist mit ca. 30nm etwas kleiner als die des Oszillators. Der wassergekühlte 20mm lange Verstärkerkristall wird mit ca. 16W eines Argon-Ionen-Lasers kontinuierlich gepumpt. Dies ermöglicht die hohe Repetitionsrate von 100kHz, beschränkt aber die Pulsenergie auf 8-9$\mu$J.

### Prismenkompressor

Durch die Dispersion der vielen optischen Elemente im Verstärker (equivalent zu ca. 15cm Quartz pro Umlauf) wird der 20fs-Puls des Oszillators auf einige Pikosekunden verlängert. Der spektral auseinander gelaufene Puls wird im Prismenkompressor wieder komprimiert.

Abbildung 2.2: FROG-Autokorrelationssignal. Die linke Abbildung zeigt in spektraler Richtung eine deutliche Asymmetrie aufgrund vorhandener negativer TOD. Diese ist in der rechten Abbildung durch zusätzliche TOD-Spiegelreflexe korrigiert.

Die Verwendung des von Procter und Wise vorgeschlagenen Doppelprismen-Aufbaus [26] ermöglicht eine hohe negative Dispersion zweiter Ordnung bei noch realisierbaren Prismenabständen. Um den Abstand der Prismen weiter zu reduzieren, wird der Kompressor zweimal durchlaufen (endgültiger einfacher Prismenabstand ca. 2.5m). Die Dispersion dritter Ordnung kann über die Anzahl der Reflexe auf den Spiegeln im RegA eingestellt werden. Dazu benötigt man zusätzliche Information über den Chirp (Phasenverlauf der Trägerwelle) des Pulses. Analysiert man die spektrale Verteilung des frequenzverdoppelten Lichts eines nicht-kollinearen Autokorrelationssignals in Abhängigkeit von der zeitlichen Überlagerung - man spricht von einem FROG-Autokorrelator (frequency resolved optical gating), kann man den Phasenverlauf eines Pulses bestimmen. Abb. 2.2 zeigt zwei FROG-Aufnahmen für nicht kompensierte (links) und kompensierte (rechts) TOD. Die Dispersion dritter Ordnung zeigt sich im asymmetrischen FROG-Bild, die vierte Ordnung in der symmetrischen spektralen Aufspaltung in den Flügeln.

| Dispersion | SOD ($fs^2$) | TOD ($fs^3$) | FOD ($fs^4$) |
|---|---|---|---|
| RegA je Umlauf | +5.576 | +4.160 | -1.692 |
| Prismenkompressor je mm | -13,14 | -28,04 | -53,39 |
| Prismenkompressor je Umlauf | +6.665 | +4.356 | -372 |
| TOD-Spiegel je Reflex | +130 | +2.000 | +500 |
| RegA (18 Umläufe) | +100.000 | +75.000 | -30.000 |
| Prismenk. (4 Durchgänge L=2640) | -112.000 | -279.000 | -567.000 |
| TOD-Spiegel (5 Reflexe je Umlauf) | +12.000 | +180.000 | +450.000 |
| Akkumulierte Dispersion | 0 | 0 | +150.000 |

Tabelle 2.1: Die Dispersion im Lasersystem: zweite (SOD), dritte (TOD) und vierte Ordnung Dispersion (FOD).

Tab. 2.1 gibt einen Überblick über die Dispersion des Lasersystems. Entscheidend geht dabei die Wahl des geeigneten Prismenmaterials ein. Der Kompressor soll möglichst wenig dritte und vierte Ordnung aufweisen. Ersteres erfordert weniger TOD-Reflexe und führt damit zu weniger Verlusten im Verstärker aufgrund der begrenzten Reflektivität der TOD-Spiegel mit der vorteilhaften Konsequenz von weniger notwendigen Umläufen im RegA bei gleicher Verstärkung. Diesen Anforderung wird das Glas S LAL 59 (OHARA) gerecht. Minimiert man die verbleibende dritte Ordnung durch ca. 150 Reflexe auf TOD-Spiegeln, so begrenzt die akkumulierte Dispersion vierter Ordnung die Pulsdauer auf 50fs. Die entsprechende Autokorrelation ist in Abb. 2.1 zu sehen. Die Breite ist etwa das Dreifache der Oszillator-Autokorrelationsbreite. Die Einschnürung in den Flügeln

weist auf die noch verbliebene Dispersion hin. Die Transmission des Kompressors beträgt ca. 75%, so dass etwa 6$\mu$J Pulsenergie für das Experiment zur Verfügung stehen.

## 2.2 Flugzeitspektrometer für Elektronen und Ionen

### Die Vakuumapparatur

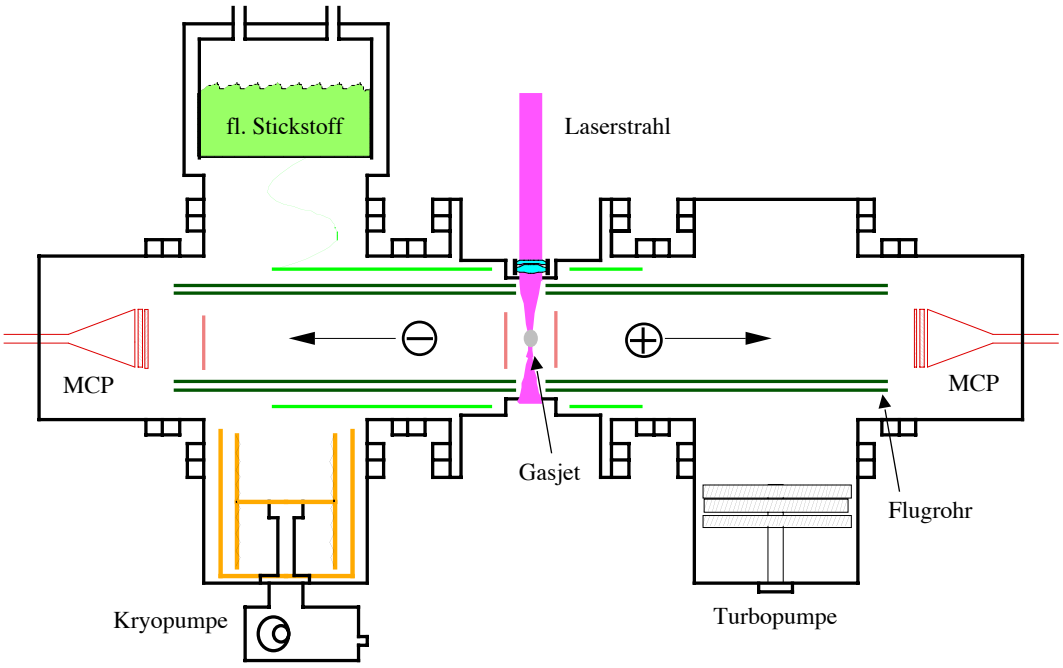


Abbildung 2.3: Das Flugzeitspektrometer mit den Detektionsarmen im Überblick.

Das Flugzeitspektrometer ist für die gleichzeitige Detektion von Ionen und Elektronen (oder Elektronen in zwei entgegengesetzte Raumrichtungen) ausgelegt (Abb. 2.3). Die Messung der Flugzeiten ermöglicht bei Elektronen die Bestimmung ihrer kinetischen Energie. Ionen müssen aus der Wechselwirkungszone durch ein elektrisches Feld abgesaugt werden. Aus der Flugzeit lässt sich der Ladungszustand eines Ions bestimmen. Das Spektrometer ist eine unabhängige Einheit auf einem beweglichen Tisch. Es ist so modular wie möglich gehalten, um für die verschiedenen Anwendungen schnell umgebaut werden zu können. Die 0.5m langen Flugstrecken liegen in entgegengesetzter Richtung symmetrisch zur Wechselwirkungszone. Ein doppelwandiges Kryoperm-Rohr (Innen-

durchmesser 60mm, mit Flüssig-Stickstoff auf 150K gekühlt) schirmt die Flugstrecke vom Erdmagnetfeld ab. Die gesamte Kammer befindet sich im Ultra-Hochvakuum und verfügt über ein Pumpensystem mit hoher Saugleistung (Kryopumpe 1500l/s, Turbopumpe 500l/s).

Im zentralen Doppelkreuzstück befindet sich die Wechselwirkungszone. Durch den Deckelflansch ragt eine Glasdüse mit einer 10$\mu$m Öffnung in die Mitte des Flugrohrs. Durch sie strömt das zu untersuchende Gas in die Wechselwirkungszone ein. Dort liegt auch der Fokus einer achromatischen Linse, die bis auf einen Abstand von 45mm an die Wechselwirkungszone herangeführt werden kann. Dies erlaubt eine minimale Fokuslänge von 60mm. Die Wechselwirkung des Lichtpulses mit dem Gas findet feldfrei statt. Die Elektronen, die entlang des feldfreien Flugrohrs driften, passieren am Ende ein geerdetes Gitter und werden von einer Mikrokanalplatte (MCP: micro channel plate) abgesaugt und detektiert. Für die Ionen wird kurz nach der Wechselwirkung mit dem Laserpuls eine Hochspannung von +2kV an ein Gitter nahe der Düse angelegt. Ein schnelles Einschalten der Spannung ermöglichen zwei Hochspannungsschalter (Behlke HTS31) in Push-Pull-Konfiguration mit Anstiegszeiten von 100ns. Das angelegte elektrische Feld schiebt die Ionen durch ein weiteres geerdetes Gitter in den zweiten Arm des Spektrometers, in dem sie nachbeschleunigt und von einer MCP detektiert werden. Nach 2$\mu$s wird die Spannung wieder ausgeschaltet, so dass beim nächsten Schuss wieder feldfreie Bedingungen herrschen. Die Belastbarkeit der Hochspannungsschalter begrenzt die Repetitionsrate für den Ionennachweis auf 40kHz.

Beide MCPs gehören zu Flugzeitdetektoreinheiten (Galileo, TOF-4000), die durch einen hohen dynamischen Bereich (Elektronen-Verstärkung $>4\cdot10^6$) und einen geringen Innenwiderstand R=40MΩ auf hohe Zählraten bei sehr guter Zeitauflösung (<100ps) ausgelegt sind. Die Detektionswahrscheinlichkeit liegt bei 50% für Ionenenergien über 5keV und für Elektronenenergien von einigen hundert Elektronenvolt. Die angelegte Spannungsdifferenz von 2kV zwischen Vorder- und Rückseite der Mikrokanalplatten erfordert ein Vakuum besser als $10^{-5}$mbar und limitiert so die Targetgasdichte.

### Die Datenerfassung

Die Laser-Repetitionsrate von 100kHz entspricht einer Messperiode von 10$\mu$s, in der die Datenerfassung abgeschlossen und die Messelektronik für den nächsten Schuss vorbereitet werden muss. Als Startsignal dient der Femtosekundenpuls, dessen Ankunft mit einer Photodiode aufgenommen wird. Die MCP-Signale der Elektronen und Ionen werden in

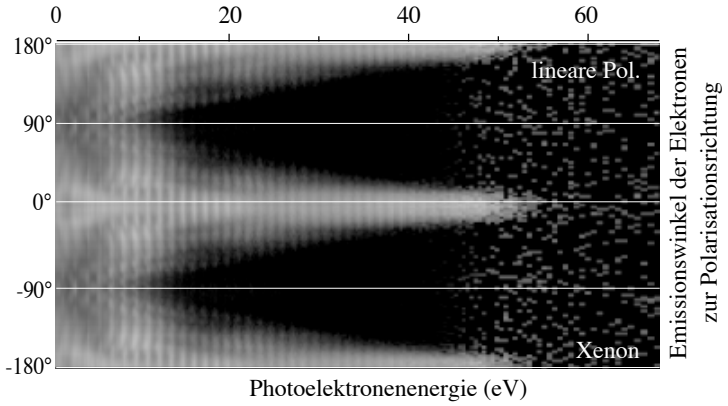


Abbildung 2.4: Eine Winkelverteilung der Photoelektronen in Aufsicht. In 145 Winkelschritten wird die Polarisationsachse viele Male zwischen -180° und +180° hin- und zurückgedreht, und die Elektronen werden entsprechend ihrer Energie und Emissionsrichtung in einen zweidimensionalen Multikanalanalysator einsortiert.

schnellen Diskriminatoren in genormte Pulse umgewandelt und von einer Multiscaler-Karte (FAST 7886) registriert, die nahezu beliebig viele Ereignisse pro Laserschuss verarbeiten kann. Die von der Multiscaler-Karte gemessenen Zeiten werden kontinuierlich in den Hauptspeicher des Messcomputers übertragen. Dies ermöglicht gemittelte Zählraten von 200kHz, zwei Elektronen pro Schuss.

In der Messung wird die Intensität, die Elliptizität oder die Richtung der Polarisation variiert. Dazu steuert der Messcomputer die Winkeleinstellungen der $\lambda/2$- bzw. $\lambda/4$-Plättchen. Während einer Messung wird jede Winkeleinstellung viele Male für eine feste Zeitdauer, meistens zwei Sekunden, angefahren. Dadurch können Elektronen- oder Ionenspektren für verschiedene Elliptizitäten, Intensitäten oder Emissionsrichtungen quasi gleichzeitig aufgenommen werden. Auf diese Weise läßt sich ihre Elliptizitäts-, Intensitäts- oder Emissionswinkelabhängigkeit messen und gleichzeitig der Einfluss systematischer Fehler minimieren, die durch Drifts in der Laserleistung etc. verursacht werden könnten. Ein Beispiel einer Messung der Winkelverteilung von Photoelektronen zeigt Abb. 2.4. Dargestellt ist die Aufsicht auf die Photoelektronenspektren für die verschiedenen Emissionsrichtungen. Die Zählrate ist in Graustufen kodiert (hell: hohe Zählrate). Deutlich erkennt man das Plateau entlang der Polarisationsrichtung (0° und $\pm$180°). Die Peakstruktur zeigt sich in der streifenförmig verlaufenden Modulation der Graustufen.

Im Spektrum in Abb. 2.5 sind die Flugzeiten der Ionen der schweren Edelgase zusammengefasst. Die verschiedenen Isotope in Xenon und Krypton können aufgelöst werden. Der Restgasanteil in der Vakuumkammer kann den Massen entsprechend zugeordnet werden.

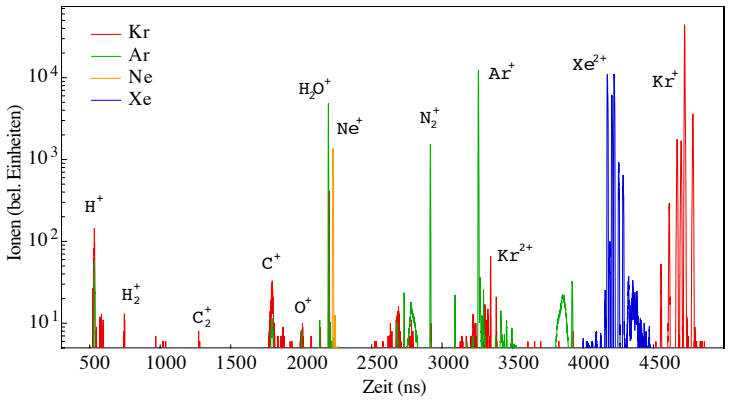


Abbildung 2.5: Flugzeitspektrum der Ionen: Die gemessenen Flugzeiten können den Ionen mit ihren Isotopen und Ladungszuständen zugeordnet werden.

## 2.3 XUV-Spektrometer

Das Spektrometer ist für die Detektion hoher Harmonischer im Wellenlängenbereich zwischen 60 und 20nm ausgelegt. Bei der fundamentalen Wellenlänge von 800nm liegen die Harmonischen der 13. bis 45. Ordnung in diesem spektralen Bereich. Die dafür notwendige Intensität im Gas (ca. $2{\cdot}10^{14}$W/cm$^2$) kann durch die im beschriebenen Lasersystem erzeugten Laserpulse leicht erreicht werden, wenn entsprechend stark fokussiert wird. Die Erzeugung der Harmonischen hängt von der atomaren Antwort und von makroskopischen Effekten im Gas (Phasenanpassung von Harmonischer und eingestrahlter Fundamentalwelle) ab. Die notwendige starke Fokussierung hat schlechte Bedingungen für die Phasenanpassung zur Folge. Dies ist hier nicht nachteilig, sondern erwünscht, da die Untersuchung von atomaren Aspekten der Harmonischen-Erzeugung im Vordergrund steht. Allerdings vermindert sich die Effizienz des Prozesses, und eine hohe Empfindlichkeit des Spektrometers ist erforderlich. Im Detektionsbereich liegt diese bei ca. 20%. Die hohe Repetitionsrate des Lasersystems steigert die Sensitivität des Gesamtsystems.

Abb. 2.6 zeigt schematisch den Aufbau des Spektrometers. Eine ausführliche technische Beschreibung steht in [25], die wichtigsten Eigenschaften und die Umbauten werden im folgenden zusammengefasst. Das Spektrometer unterteilt sich in die Wechselwirkungskammer, in die Hauptkammer, die direkt oberhalb einer 880l/s Turbopumpe liegt, und in die Detektorkammer. Aufgrund der hohen Reabsorption der Harmonischen im Gas für diesen Bereich des Vakuum-UV-Spektrums ist der Großteil der Apparatur (Haupt- und Detektorkammer) im Hochvakuum ($< 10^{-5}$mbar). Nur die klein gehaltene Wechselwirkungszone hat einen höheren Hintergrunddruck ($< 10^{-2}$mbar) und wird gegen die Hauptkammer differentiell gepumpt. Hier strömt durch eine Glasdüse mit einer ca. 200$\mu$m großen Öffnung das zu untersuchende Gas ein. Der Druck am Düseneingang kann von wenigen Millibar bis zu einigen Bar eingestellt werden. Im Gasjet direkt unterhalb

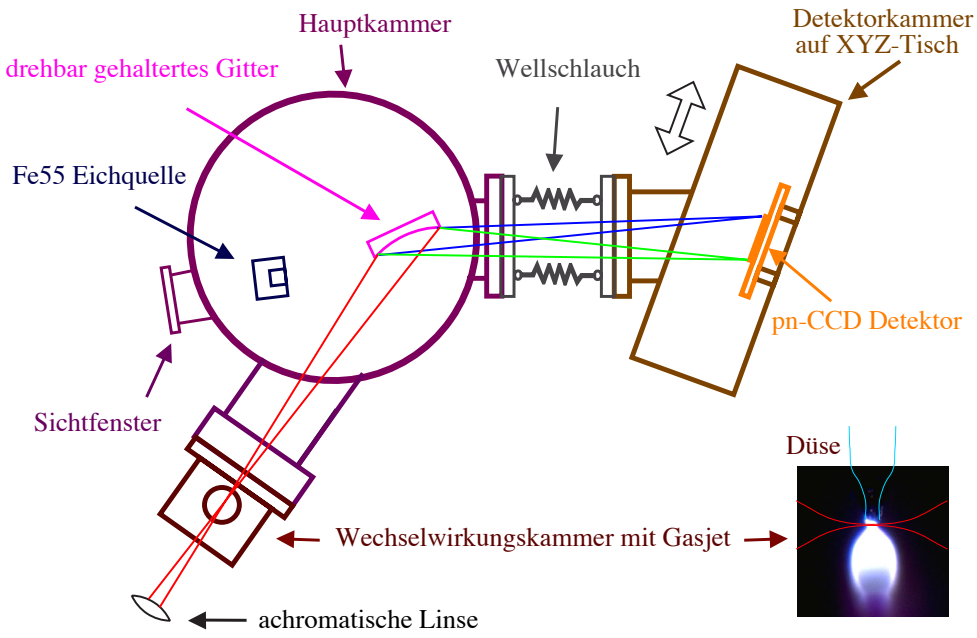


Abbildung 2.6: Das XUV-Spektrometer in der Aufsicht. Es befindet sich auf einem transportablen Experimentiertisch. Der Xenon-Gasjet leuchtet im Laserfokus auf einigen Millimetern Länge und erleichtert die Düsenjustage.

der Düse ist der Druck auf etwa ein Viertel des Düsenvordrucks gefallen. In ihn wird der Laserstrahl mit einer achromatischen Linse fokussiert (f=60mm oder f=80mm). Damit befinden sich im Fokusvolumen (Fokusdurchmesser 10$\mu$m, konfokaler Parameter ca. 500$\mu$m) bei 20mbar Vordruck ca. $10^{12}$ Atome. Die Frequenzkonversion erfolgt kollinear mit der Fundamentalen, wobei die Divergenz der Harmonischen geringer ist [28].

Durch eine Lochblende gelangt der Strahl in die Hauptkammer und trifft dort auf ein Flat-field Gitter, das um die vertikale Achse drehbar gehaltert wird. Das Gitter erfüllt zwei Aufgaben. Zum einen werden die Harmonischen spektral getrennt und zum anderen werden sie nebeneinander auf den ortsauflösenden Detektor in einer Ebene fokussiert. Das mit Platin beschichtete Toroidgitter bildet das Spektrum (70-20nm) auf einer Länge von 60mm ab. Das entspricht einer Dispersion von 8Å/mm. Die Brennweite des Gitters ist ca. 300mm und seine Effizienz liegt bei 30% bei einem Einfallswinkel von 67°. Das Spektrum wird auf einem hochempfindlichen pn-CCD-Detektor (charge-coupled device) abgebildet. Bedingt durch die Größe der empfindlichen Fläche des Chips (30mm x10mm, bzw. 200x64 Pixel) muss dieser zur Aufnahme eines vollen Spektrums entlang der Fokuslinie verschoben werden können. Um für verschiedene Fokussierungen eine saubere und einfache Justage zu ermöglichen, wurde die Detektorkammer auf einen eigens konstru-

ierten drehbaren XYZ-Tisch gesetzt, so dass der Detektor entlang der Fokuslinie ausgerichtet und in die jeweilige Fokusposition gebracht werden kann. So kann zusammen mit dem drehbaren Gitter die Auflösung des Gitters von 1.25Å pro Pixel erreicht werden.

### Der pn-CCD-Detektor

Der pn-CCD-Detektor entstammt einer Zusammenarbeit des Max-Planck-Instituts für Physik mit dem Max-Planck-Institut für extraterrestische Physik, dem Halbleiter-Labor der MPG und dem Astronomischen Institut an der Universität Tübingen. Er wurde zur Spektroskopie hochenergetischer Röntgen-Strahlung (0.5-10keV) entwickelt, für die er eine Detektionswahrscheinlichkeit von fast 100% besitzt, und er befindet sich seit Beginn des Jahres 2000 auf dem Röntgen-Satelliten Newton im Einsatz. Hohe Empfindlichkeit und flexible Ausleseprozeduren ermöglichen vielfältige Anwendungen nicht nur im All, sondern auch auf der Erde. Dies motivierte einige Gruppen, darunter die Firma Ketek, das Max-Planck-Institut für Quantenoptik sowie die Universitäten in Mainz und Bonn, das hier verwendete Gesamtsystem um den Chip herum zu entwickeln.

Im Gegensatz zu üblichen CCDs, die in MOS-Technologie aufgebaut sind, beruht das hier verwendete CCD auf pn-Übergängen. Die hohe Sensitivität des rückseitig beleuchteten pn-CCD-Chips basiert auf der 270$\mu$m dicken, vollständig an Ladungsträgern verarmten und damit sensitiven Schicht, die das n-dotierte Siliziumsubstrat selbst bildet. Eine nur 100nm dünne stark p-dotierte Schicht bildet den Rückkontakt, der mit gegenüberliegenden Kontakten (drei je Pixel) den Potentialverlauf vorgibt. Die gesamte Auslesestruktur befindet sich auf der dem einfallenden Strahl abgewandten Seite und mindert somit nicht die Empfindlichkeit auf die einfallenden Photonen. Diese erzeugen Elektron-Loch-Paare, die durch die anliegende Spannung getrennt werden. Die Löcher driften zum Rückkontakt und werden dort neutralisiert. Die Elektronen werden in Potentialsenken gefangen. Alle Pixel zusammen bilden ein Ladungsfeld, das dem Bild der auftreffenden Photonen entspricht und im folgenden als ‘frame’ bezeichnet wird. Eine stufenförmige Potentialanhebung ermöglicht den Ladungstransport zur Ausleseanode unter Beibehaltung der Ortsauflösung. Durch geeignete Spannungsmuster wird so ein Bild (frame) entlang den 64 Kanälen ausgelesen. Auf dem Chip befinden sich Verstärker für jede Zeile, so dass jede Spalte gleichzeitig verstärkt und gefiltert werden kann. Dies beschleunigt den Auslesevorgang auf 2ms Dauer. Diese Totzeit ist bei Belichtungszeiten von 200ms vernachlässigbar klein. Der Untergrund von wenigen Elektronen pro Pixel wird durch Kühlen des Chips mit einem Flüssigstickstoff-Dewar auf die Betriebstemperatur von 130K erreicht. Unter-

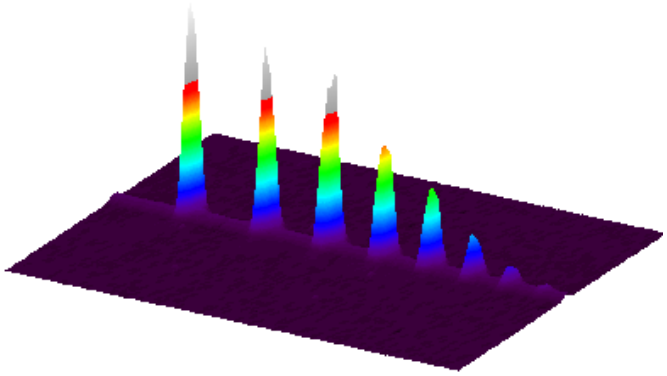

Abbildung 2.7: Das Harmonischen-Spektrum auf dem pn-CCD-Chip. Man sieht die 19. bis 33. Harmonische in Krypton bei einer Intensität von $2{\cdot}10^{14}$W/cm$^2$.

grundmessungen ohne Gas erlauben die Korrektur des Untergrunds auf jedem Pixel, und da durch eine Blende nur 12 Zeilen der Harmonischen-Strahlung ausgesetzt sind, können mit den Daten aus dem abgedeckten Bereich systematische Fehler korrigiert werden (insbesondere die sogenannte common-mode Korrektur).

Eine radioaktive Eichquelle in der Hauptkammer erlaubt das Überprüfen des Detektors ohne Laser. Alternativ kann man zur Justage des Laserstrahls einen an der Eichquellen-Halterung montierten Spiegel in den Strahlengang vor das Gitter herablassen. Auf diese Weise wird der Strahl durch das Sichtfenster auf eine Kamera gelenkt und so sein Durchgang durch die Lochblende optimiert. Abb. 2.7 zeigt das Signal der 19. bis 33. Harmonischen auf dem CCD-Chip.

Die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors ist für den Röntgenbereich optimiert (nahezu 100%) und liegt im XUV-Bereich noch bei über 90%. Leider ist sie auch im Infraroten noch so hoch, dass Streulicht der Fundamentalen bei 800nm den Chip sättigen würde. Deswegen wurde die Kammer von innen mit einer Spezialfarbe schwarz gestrichen, Streulicht mit Blenden unterdrückt, die Fundamentale mit einem Rasierklingenstapel weitgehend abgefangen und ein Aluminium-Filter (200nm dick) lichtdicht auf die Chip-Halterung aufgesetzt. Damit ist die Effizienz des Detektors durch den 100nm dicken Rückkontakt, die Absorption des Al-Filters und die Reflektivität des Gitters gegeben. Abb. 2.8 fasst die Detektorempfindlichkeit zusammen. Sie liegt im interessierenden Wellenlängenbereich bei etwa 20%. Dominiert wird sie auf der kurzwelligen Seite durch den Al-Filter und im langwelligen Bereich durch die Transmission der insensitiven Si-Eintrittsschicht. Der Detektionsbereich erstreckt sich somit von der 13. bis zur 43. Harmonischen. Typische Spektren der Edelgase zeigt Abb. 2.9. Der dynamische Bereich

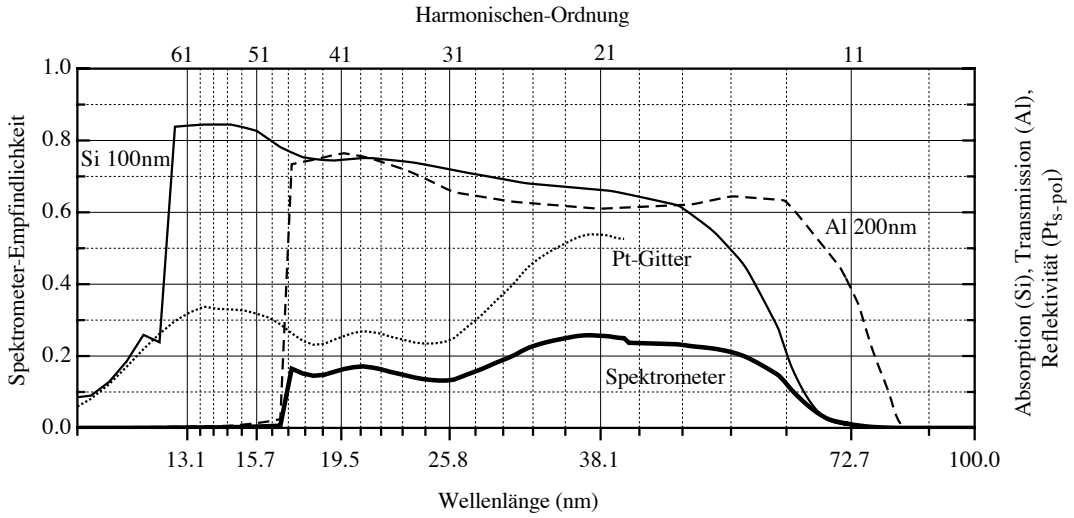


Abbildung 2.8: Die Effizienz des XUV-Spektrometers ist durch die Reflektivität des Gitters und durch die Transmission des Al-Filter und der p-dotierten Eintrittsschicht gegeben.

liegt zwischen einer und drei Größenordnungen und ist begrenzt durch die Sättigung des Chips und durch die Untergrundzählrate. Die im Fokus erzeugten Harmonischen durchlaufen zwangsweise eine kleine Strecke im Gasjet. Dort werden sie je nach Gasdichte reabsorbiert. In Abb. 2.10 ist für alle Edelgase eine 500$\mu$m lange Strecke bei 30mbar Druck in die Detektorempfindlichkeit einbezogen worden. Der Einfluss auf die höheren Harmonischen ist nur gering. Ab der 25. Harmonischen (32nm) absorbieren die Edelgase unterschiedlich stark.

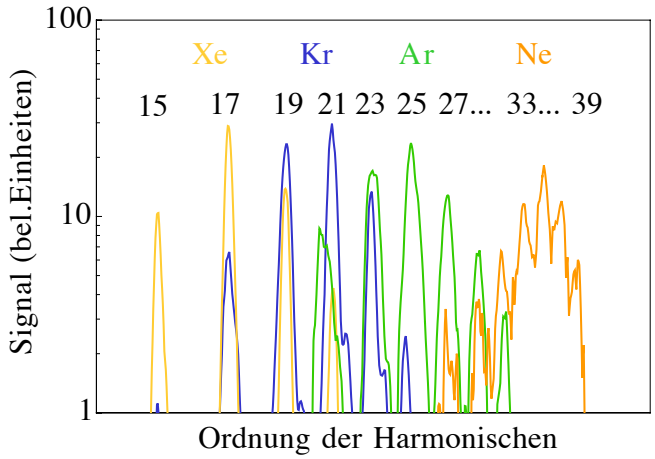


Abbildung 2.9: Der detektierbare Bereich des XUV-Spektrometers dargestellt anhand typischer Harmonischen-Spektren in Xe, Kr, Ar und Ne. Das Signal wurde über die Reihen aufsummiert.

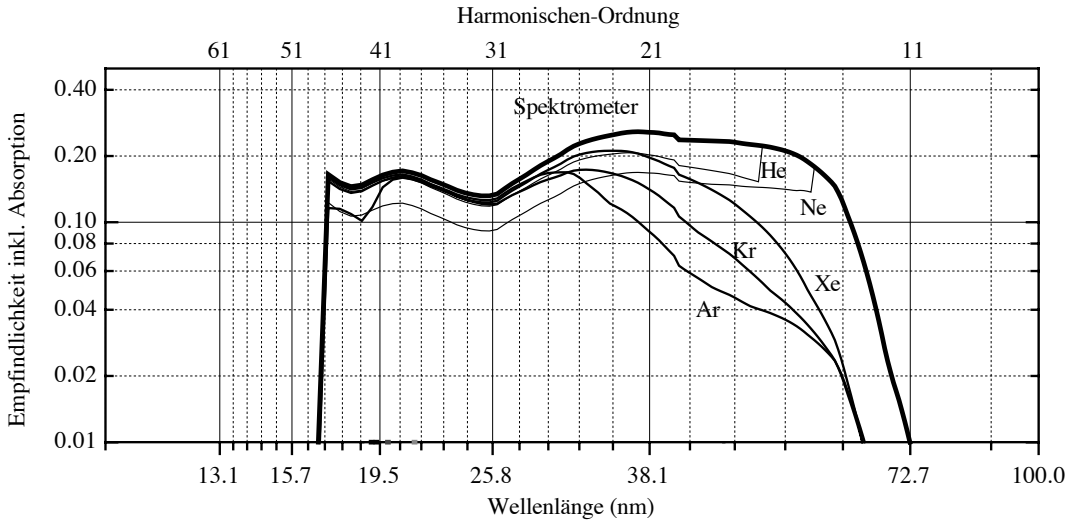


Abbildung 2.10: Die Empfindlichkeit des XUV-Spektrometers für verschiedene Edelgase

### Datenerfassung und Verarbeitung

Die Datenerfassung erfolgt über eine SUN-Workstation. Dabei werden die Frames einzeln abgespeichert. Das Auslesetriggersignal kommt wieder vom PC, der wie beim Flugzeitspektrometer die Positionen von $\lambda/2$- und $\lambda/4$-Plättchen kontrolliert. Nach der Messung werden systematische Fehler korrigiert und die Einzelaufnahmen - analog dem Verfahren bei ATI - nach Winkelstellung sortiert und aufsummiert. Abb. 2.11 zeigt eine Messung der Intensitätsabhängigkeit für Argon. Die Intensität wurde schrittweise von 100% bis auf 30% der Maximalintensität reduziert und die Frames der jeweiligen Intensitätsintervalle addiert. Anschliessend wurde das Signal über die Zeilen, d.h. spektral aufgelöst, aufsummiert. Reduziert man die Intensität, verschwinden die höheren Harmonischen, wie erwartet, der Reihe nach.

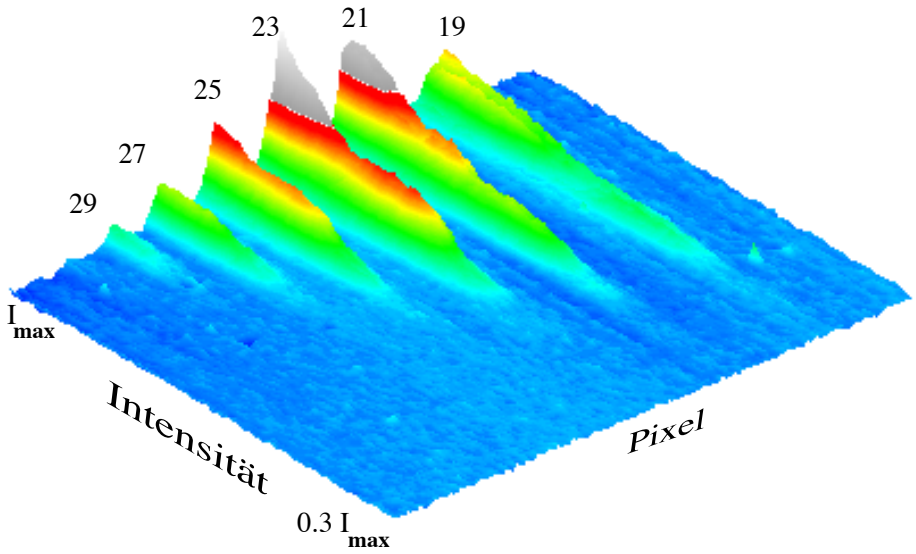


Abbildung 2.11: Eine Intensitätsverteilung der 19. bis 29. Harmonischen in Argon. In 72 Schritten wird das Intensitätsintervall von 30-100% viele Male durchlaufen.

## 2.4 Die Parameter im Experiment

Eine Zusammenfassung der wichtigsten experimentellen Parameter erfolgt in den folgenden Tabellen:

| | | | | |
|---|---|---|---|---|
| Wellenlänge | 800nm | f-Zahl (f/# = f/D, [mm/mm]) | 80/8 | 60/12 |
| Photonenenergie | 1.55eV | Fokusdurchmesser [$\mu$m] | 10 | 5 |
| Pulsenergie | >6$\mu$J | konfokaler Parameter [$\mu$m] | 200 | 50 |
| Pulsdauer | 50fs | Intensität [$10^{14}$W/cm$^2$] | 1 | 2 |
| Repetitionsrate | 100kHz | Ponderomotive Energie [eV] | 6 | 12 |

Tabelle 2.2: Die Laserparameter

| | 54 Xe | 36 Kr | 18 Ar | 10 Ne | 2 He |
|---|---|---|---|---|---|
| Masse (a.u.) | 131.29 | 83.80 | 39.95 | 20.18 | 4.00 |
| Bindungsenergie $E_{ion}$ [e.V.] | 12.10 | 14.1 | 15.7 | 21.56 | 24.6 |
| $E_{ion}/\hbar\omega$ | 7.8 | 9.0 | 10.1 | 13.9 | 15.9 |
| Elektronen Konfiguration | [Kr] $4d^{10}$ $5s^2$ $5p^6$ | [Ar] $3d^{10}$ $4s^2$ $4p^6$ | [Ne] $3s^2$ $3p^6$ | [He] $2s^2$ $2p^6$ | $1s^2$ |
| Valenzorbitalradius (a.u.) | 0.74<br>1.7<br>1.9 | 0.4<br>1.37<br>1.57 | 1.2<br>1.3 | 0.68<br>0.63 | 0.57 |
| Sättigungsintensität $I_s$ [$1\cdot10^{14}$W/cm$^2$] | 1.5 | 2 | 3 | 7 | 10 |

Tabelle 2.3: Die Edelgase

| Harmonische-Ordnung | Wellenlänge (nm) | Pixelabstand auf CCD |
|---|---|---|
| 11 | 72.7 | |
| 13 | 61.5 | 78 |
| 15 | 53.3 | 60 |
| 17 | 47.1 | 47 |
| 19 | 42.1 | 39 |
| 21 | 38.1 | 33 |
| 23 | 34.8 | 28 |
| 25 | 32.0 | 24 |
| 27 | 29.6 | 21 |
| 29 | 27.6 | 18 |
| 31 | 25.8 | 16.3 |
| 33 | 24.2 | 14.7 |
| 35 | 22.9 | 12.5 |
| 37 | 21.6 | 11.8 |
| 39 | 20.5 | 10.5 |
| 41 | 19.5 | 9.6 |
| 43 | 18.6 | 8.7 |

Tabelle 2.4: Die hohen Harmonischen zur Fundamentalen bei 800nm im detektierbaren Bereich.

# Kapitel 3

# Das klassische Modell

Aus der Vielzahl der theoretischen Ansätze für die Beschreibung der Physik von Atomen in starken Feldern sollen in dieser Arbeit zwei näher betrachtet werden: Das klassische Modell und die Keldysh-Theorie. Beides sind analytische Theorien, die ein intuitives Bild der Wechselwirkung geben und quantitative Aussagen zum Ionisationsvorgang treffen. Letztere stimmen mit den experimentellen Ergebnissen sehr gut überein. Die Keldysh-Theorie ist die quantenmechanische Version des klassischen Modells. Damit erlaubt sie die Beschreibung von Interferenzphänomenen, die zum Beispiel in den Photoelektronenspektren beobachtet wurden.

Die theoretische Beschreibung der drei Effekte ATI, HHG und NSDI konzentriert sich in diesem Kapitel auf das klassische Modell, das auf das sogenannte 'Modell des einfachen Mannes' (simple man's model) zurückgeht [29]. Dieses Modell beschreibt den Ionisationsvorgang mit Hilfe klassischer Elektronentrajektorien in einer linear polarisierten elektromagnetischen Welle in drei Schritten (Mehrstufenmodell). 1989 wurde es von Corkum auf den Fall der Above-threshold Ionisation mit 10$\mu$m Wellenlänge angewandt, um die Driftenergie der Elektronen zu beschreiben [30]. 1993 und 1994 bestätigte das Modell den Cutoff des Harmonischen-Plateaus bei $3.2U_p$ [31] und den Cutoff des ATI-Plateaus bei $10U_p$ unter Einbeziehung der Rekombination bzw. Rückstreuung des Elektrons am Kern [32, 5]. Außerdem gab es einen ersten Hinweis zur Erklärung der NSDI aufgrund von Stoßionisation. Als semiklassisches Modell - erweitert auf beliebige Polarisation des elektrischen Feldes und auf die Dispersion des Wellenpakets des Elektrons (Kap. 3.3) - wurde es bald zum Vergleich mit ersten Messungen der Elliptizitätsabhängigkeit von Harmonischen und doppelt geladenen Ionen herangezogen [62].

Die quantenmechanische Version des Mehrstufenmodells ist eine Variante der Keldysh-Theorie [34]. Diese wird im nächsten Kapitel vorgestellt. Für weitere theoretische Ansätze wie die Floquet-Theorie [35] und die numerische Lösung der Schrödinger Gleichung in 3D [36] wird auf die Literatur verwiesen.

Das klassische Modell beruht auf zwei Grundannahmen: Zum einen wird das Elektron als klassisches Teilchen betrachtet. Zum anderen wendet man die Stark-Feld-Approximation an. Letztere bedeutet,

1. dass das im Grundzustand gebundene Elektron vom elektrischen Feld des Lasers vernachlässigbar wenig beeinflusst wird, und
2. dass, nachdem das Elektron ins Kontinuum gelangt ist, das atomare Potential vernachlässigt wird.

Die erste Annahme wird durch das hohe Ionisationspotential $I_p$ gerechtfertigt, das ein Vielfaches der Photonenenergie $\hbar\omega$ beträgt. Der zweite Punkt beruht auf der dominierenden Auswirkung der hohen Feldstärke des Lasers auf die Bewegung eines Elektrons im Kontinuum im Vergleich zum Einfluss des räumlich lokalisierten atomaren Bindungspotentials. Dazu betrachte man die Bewegung des freien Elektrons im oszillierenden monochromatischen elektrischen Feld.

## 3.1 Das freie Elektron im oszillierenden elektrischen Feld

Befindet sich ein ungebundenes Elektron im elektrischen Feld $E(t)$ mit der Frequenz ω

$$E(t) = E_0 \sin\omega t \tag{3.1}$$

folgt seine Bahn der Bewegungsgleichung $m\ddot{x}(t) = e\ E(t)$. Die Geschwindigkeit des Elektrons zur Zeit t ergibt sich zu

$$\dot{x}(t) = -\frac{eE_0}{m\omega}(\cos\omega t - \cos\omega t_0) \tag{3.2}$$

und sein Ort zur Zeit t ist gegeben durch:

$$x(t) = \frac{eE_0}{m\omega^2}(\omega(t-t_0)\cos\omega t_0 - (\sin\omega t - \sin\omega t_0)). \tag{3.3}$$

Dabei bestimmt die Anfangsbedingung, dass das Elektron seine Bahn zum Zeitpunkt $t_0$ am Ort $x(t_0) = 0$ mit der Geschwindigkeit $\dot{x}(t) = 0$ beginnt, die Bewegung des Elektrons im Feld. Gl. 3.3 liefert die Größe der *Zitteramplitude* des Elektrons im Feld:

$\alpha = eE_0/m\omega^2$. Für eine Spitzenintensität von $1{\cdot}10^{14}$W/cm$^2$ bei 800nm Wellenlänge, d.h. einer maximalen Feldstärke von $2.7{\cdot}10^{10}$V/m, ergibt sich : $\alpha = 8.4$Å$= 16$ atomare Einheiten. Sie ist also wesentlich größer als die Ausdehnung eines Atoms.

Die Größe der Zitterenergie, d.h. die über einen optischen Zyklus T=$2\pi/\omega$ gemittelte kinetischen Energie eines freien Elektrons im elektrischen Feld, wird *ponderomotive Energie* bezeichnet:

$$U_p := \frac{1}{2} m \langle \dot{x}(t)^2 \rangle_t = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2}. \tag{3.4}$$

Die ponderomotive Energie ist proportional zur Intensität des Feldes. Für obige Parameter ergibt sich für die ponderomotive Energie: $U_p = 6$eV$= 3.8\hbar\omega$.

## 3.2 Das Mehrstufenmodell

Das klassische Mehrstufenmodell hat einerseits ein intuitives Bild für die physikalischen Vorgänge geschaffen und andererseits die anfangs erwähnten physikalische Größen (ATI- und HHG-Cutoff-Energien) quantitativ erklären können.

### 1. Schritt

Die Stark-Feld-Approximation impliziert, dass zu einem Zeitpunkt (im folgenden $t_0$) ein Elektron vom gebundenen Grundzustand ins Kontinuum angehoben wird. Man nimmt an, wie bereits in Gl. 3.3 impliziert, dass es sich dann am Ort des Kerns mit der Anfangsgeschwindigkeit Null befindet. Daß diese Annahmen gerechtfertigt sind, ergibt sich aufgrund der Näherung einer im Vergleich zum Atom großen Oszillationsamplitude und einer im Vergleich zur Ionisationsenergie kleinen Photonenenergie. Auch der Vergleich mit der quantenmechanischen Theorie und neuere Messungen der Anfangsbedingungen des Elektrons [38] bestätigen sie. Der erste Schritt macht keine Aussage zur Art des Ionisationsvorgangs selbst, unterscheidet also nicht nach optischer Tunnel- und Mehrphotonenionisation. In der semiklassischen Erweiterung wird auf die Abhängigkeit des ersten Schritts von der Polarisation näher eingegangen (Kap. 3.3).

## 2. Schritt: Das Elektron im elektrischen Feld

Im zweiten Schritt befindet sich das Elektron zur Anfangsphase $\omega t_0$ im elektrischen Feld $E(t)$ aus Gl. 3.1 und wird beschleunigt: $\ddot{x}(t) = e/m\, E(t)$. Die Geschwindigkeit des Elektrons ergibt sich wieder aus Gl. 3.2 und sein Ort aus Gl. 3.3. Abb. 3.1a zeigt Beispiele für die Bewegung der Elektronen im Feld einer elektromagnetischen Welle bei 800nm Wellenlänge (2.67fs Periodendauer). Die Ortskoordinate ist in Einheiten der Zitteramplitude $\alpha$ angegeben.

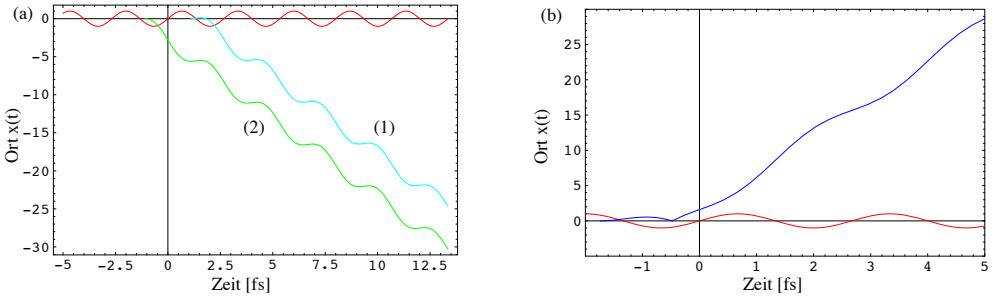


Abbildung 3.1: Die linke Abbildung (a) zeigt Elektronenbahnen bei 800nm Wellenlänge (2.67fs Periode) für die Startzeiten $t_0 = \pm 1.1$fs. Beide Bahnen erreichen die selbe Driftgeschwindigkeit. Ein Unterschied in den Bahnen liegt darin, dass in Kurve (1) das Elektron den Kern passieren muss. Abbildung (b) zeigt die Bahn des rückgestreuten Elektrons mit höchster Driftenergie von $10U_p$. Die Anfangsphase von 105° entspricht $t_0 = -1.88$fs in der Abbildung.

### Direkte Elektronen

Unter direkten Elektronen versteht man die Elektronen, die ohne weitere Wechselwirkung den Kern verlassen. Im Flugzeitspektrometer wird ihre zyklusgemittelte kinetische Energie der Elektronen, d.h. ihre Driftenergie, gemessen: $E = 1/2m\langle \dot{x}(t)\rangle_t^2$. Berechnet man die Driftenergie ausgehend von Gl. 3.2, so erhält man für die direkten Elektronen: $E = 2U_p \cos^2 \omega t_0$. Es ergibt sich eine maximale Energie von $2U_p$ für direkte Elektronen. Des Weiteren sieht man, dass bis auf die maximale Driftenergie immer zwei Startzeiten innerhalb eines optischen Zyklus zur selben Driftenergie führen.

### Direkte Elektronen bei zirkularer Polarisation

Erweitert man Gl. 3.1 auf elliptisch polarisierte Felder

$$E(t) = \frac{E_0}{\sqrt{1+\xi^2}} \begin{pmatrix} \sin\omega t \\ \cos\omega t \end{pmatrix}, \tag{3.5}$$

so erhält man für die Driftenergie in Abhängigkeit von der Elliptizität $\xi$

$$E = 1/2m\langle \dot{x}(t)\rangle_t^2 = \frac{2U_p}{1+\xi^2}\left(\cos^2\omega t_0 + \xi\sin^2\omega t_0\right). \tag{3.6}$$

Für zirkulare Polarisation ($\xi = \pm 1$) ergibt dies eine von der Anfangsphase $\omega t_0$ unabhängige Driftenergie von $1U_p$.

Abb. 3.2 zeigt zwei ATI-Spektren in Xenon bei ca. $6{\cdot}10^{13}$W/cm$^2$ für lineare und zirkulare Polarisation. Für zirkulare Polarisation erkennt man deutlich das Maximum im Spektrum bei einer Energie um $1U_p$. Der Cutoff der direkten Elektronen um $2U_p$ ist nicht erkennbar, da die hochenergetischen Elektronen des ATI-Plateaus in diesem Bereich dominieren. Letztere beruhen auf einem Rückstreuprozess, den der 3. Schritts des Mehrstufenmodells behandelt.

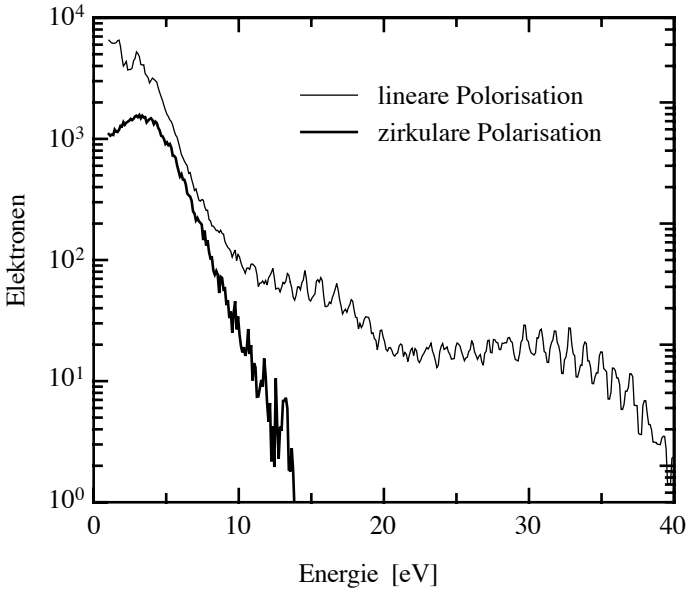


Abbildung 3.2: ATI-Spektren in Xenon für lineare und zirkulare Polarisation. Deutlich erkennt man den $1U_p$ Cutoff für zirkulare Polarisation und den $10U_p$ Cutoff des Plateaus für lineare Polarisation ($U_p \approx 3.6$eV).

## 3. Schritt: Die Wechselwirkung mit dem Ionenrumpf

Voraussetzung für eine Wechselwirkung mit dem Ionenrumpf ist, dass die vom Feld getriebene Bewegung des Elektrons zum Ionenrumpf zurückführt. Dazu muss es zwischen einem Extremum und dem nachfolgenden Nulldurchgang des Feldes starten. Für das zurückkehrende Elektron ergeben sich nun verschiedene Möglichkeiten:

### Rückstreuung - ATI

Das Elektron streut am Ionenrumpf elastisch und wird danach vom Feld aufgrund der neuen Anfangsbedingungen weiter beschleunigt. Abb. 3.1(b) zeigt dies für den zur höchsten Driftenergie führenden Fall: Das Elektron gelangt bei einer Phase von 105° ins Kontinuum. Nach der elastischen Rückstreuung driftet es mit der maximal erreichbaren Energie von $10.007U_p$ vom Ionenrumpf weg. Die Driftenergien der "rückgestreuten Elektronen" - sie werden auch "indirekte Elektronen" genannt - in Abhängigkeit von der Anfangsphase zeigt Kurve (1) in Abb. 3.3. Diese hochenergetischen Elektronen bilden das ATI-Plateau. Dabei führen immer zwei Startzeiten innerhalb eines optischen Zyklus zu Trajektorien mit der gleichen Driftenergie.

### Stoßionisation - NSDI

An Stelle elastischer Streuung ist auch inelastische Streuung möglich: Wenn das Elektron bei der Rückkehr zum Ionenrumpf über genügend Energie verfügt, kann ein weiteres Elektron aus der Elektronenhülle gelöst werden. Das entsprechende quantenmechani-

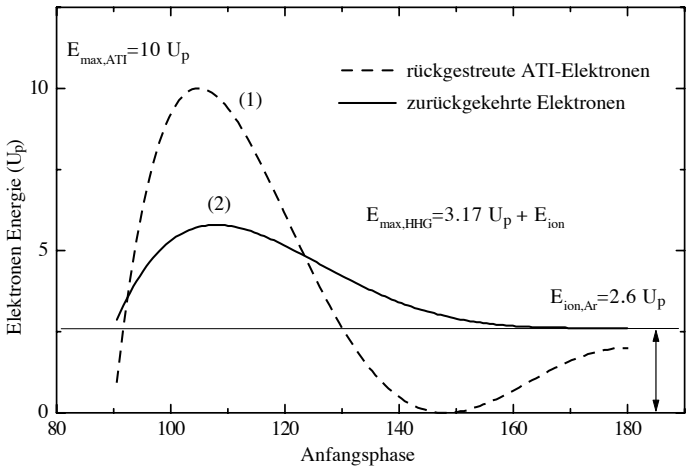


Abbildung 3.3: Energie der rückgestreuten Elektronen (1, ATI) und Rückkehrenergie der Elektronen (2, HHG) in $U_p$ in Abhängigkeit von der Anfangsphase $\omega t_0$ in Grad.

sche Modell erlaubt dies auch dann, wenn die Rückkehrenergie nicht zur Ionisation des zweiten Elektrons ausreicht. Ähnlich den oberhalb des Cutoff gemessenen Elektronenenergien nimmt die Wahrscheinlichkeit für diesen Prozess allerdings mit zunehmendem Energiedefizit exponentiell ab. Die meisten experimentellen Ergebnisse werden durch die quantenmechanische Theorie auch für mehrfach geladene Ionen sehr gut reproduziert. Dies erlaubt den Schluss, dass inelastische Elektronenstreuung vorwiegend für den Effekt der nichtsequentiellen Doppelionisation verantwortlich ist.

#### Rekombination - HHG

Der dritte denkbare Prozess bei der Rückkehr des Elektrons ist Rekombination. Dabei gibt das Elektron seine momentane kinetische Energie zum Zeitpunkt der Rückkehr und die im ersten Schritt gewonnene Bindungsenergie $I_p$ in Form eines energiereichen Harmonischen-Photons ab: $E_{\mathrm{HHG}} = E_{\mathrm{kin}} + I_p$. Die maximale Energie ergibt sich zu $3.17U_p + I_p$ bei einer Anfangsphase von $108^{\mathrm{o}}$ und entspricht dem experimentell gefundenen Cutoff-Gesetz für das Harmonischen-Plateau. Kurve (2) in Abb. 3.3 zeigt die zur Verfügung stehende Energie in Abhängigkeit von der Anfangsphase in Argon. Man findet wieder zwei mögliche Trajektorien mit derselben Rückkehrenergie, eine lange, die vor der $3.17U_p$- Trajektorie startet, und eine kurze, die danach beginnt. Abb. 3.3 zeigt auch, dass die Trajektorien (Startzeiten), die zu den ATI-Elektronen mit hoher kinetischer Energie führen, auch zu den hochenergetischen Harmonischen gehören.

## 3.3 Semiklassisches Modell für elliptische Polarisation

Das eben beschriebene klassische Modell legt die Verwandtschaft von ATI, NSDI und HHG nahe. Im Modell war lineare Polarisation angenommen, so dass rückkehrende Elektronen den Ionenrumpf zwangsläufig treffen. Bei elliptischer Polarisation erfährt das Elektron auch eine Auslenkung senkrecht zur Ausrichtung der Polarisationsellipse, und die Bahn des Elektrons kann den Ionenrumpf bei der Rückkehr verfehlen. Falls nun eine Verwandtschaft von ATI, NSDI und HHG vorliegt, sollten diese in ähnlicher Weise von der Elliptizität abhängen, und die Wahrscheinlichkeit für die drei Prozesse sollte mit steigender Elliptizität gleichermaßen verschwinden.

Eine plausible Annahme für die Abhängigkeit von der Elliptizität ist, dass der Wirkungsquerschnitt für den dritten Schritt im Mehrstufenmodell proportional zur Überlap-

pung der Grundzustandswellenfunktion $\Psi_0^{a_{|g\rangle}}(\mathbf{r})$ mit dem zur Zeit $t_1$ zurückkehrenden Wellenpaket $\Psi_{t_1}(\mathbf{r})$ ist. Der Begriff des Wellenpaktes macht einige einfache quantenmechanische Erweiterungen des klassischen Modells notwendig, nämlich die Wellenpaketdispersion und die Anfangsbreite des Wellenpakets. Neben der Überlappung mit dem Grundzustand muss noch die Ionisationswahrscheinlichkeit berücksichtigt werden. Diese hängt stark nichtlinear vom elektrischen Feld ab und geht als Quellenstärke in das Modell ein. Es ergibt sich ein einfaches semiklassisches Modell ohne freie Parameter, das für ATI, HHG und NSDI eine identische Abhängigkeit von der Elliptizität des einfallenden Laserfeldes vorhersagt [39, 40]. Es ist auch unter dem Namen *Gauß'sches Überlapp-Modell* (GOL) bekannt und wird in Kap. 5 zum Vergleich mit den gemessenen Daten herangezogen.

### Überlappung

Das Integral der Überlappung von Grundzustand $\Psi_0^{a_{|g\rangle}}(\mathbf{r})$ mit dem zur Zeit $t_1$ zurückkehrenden Wellenpaket $\Psi_{t_1}(\mathbf{r})$

$$O(y(t_1,\xi)) = \int d^3\mathbf{r}\Psi_{t_1}^*(\mathbf{r})\Psi_0^{a_{|g\rangle}}(\mathbf{r}) \tag{3.7}$$

ist eine Funktion des Stossparameters $y(t_1,\xi)$. Dieser entspricht der Auslenkung des Elektrons aufgrund der y-Komponente des elliptisch polarisierten elektrischen Feldes aus Gl. 3.5 und berechnet sich aus dem klassischen Modell zu:

$$y(t_1,\xi) = -\xi\sqrt{\frac{1}{1+\xi^2}}\frac{eE_0}{m\omega^2}(\omega(t_1-t_0)\sin\omega t_1 + (\cos\omega t_1 - \cos\omega t_0)) \tag{3.8}$$

Die relative Überlappung $R = |O(0)|^2/|O(y_d)|^2$ ist ein Maß für die Unterdrückung durch die Ablenkung $y(t_1,\xi)$ und soll im folgenden berechnet werden.

### Anfangsbreite und Dispersion

Die Überlappung wird durch Anfangsbreite und Dispersion der Wellenfunktion beeinflußt. Nach der Tunnelionisation wird das Elektron zur Zeit $t = 0$ durch eine Gaußpaket der transversalen Breite $a_0$ approximiert (in atomaren Einheiten $\hbar = e = m = 1$):

$$\Psi_0^{a_0}(\mathbf{r}) = (a_0\sqrt{\pi})^{-3/2}\exp(-\mathbf{r}^2/(2a_0^2) \tag{3.9}$$

Die Anfangsbreite wird durch die transversale Breite des Tunnelstroms angenähert. Sie wurde von Gottlieb für den Fall der stationären Tunnelbarriere analytisch gelöst [44]:

$$a_0^2 = a_{|g\rangle}^2 + 2a_{|g\rangle}z_0 = a_{|g\rangle}^2 + 2a_{|g\rangle}E_{\text{ion}}E_0 \tag{3.10}$$

Dabei ist $a_{|g\rangle} = 1/\sqrt{2E_{\text{ion}}}$ die Breite des atomaren Grundzustand und $z_0$ die Länge des Tunnels.

Für den Fall eines oszillierenden Feldes kann diese Lösung direkt übernommen werden, solange die Tunnelzeit kürzer ist als die Periode des optischen Feldes. Ob diese Bedingung erfüllt ist, kann mit dem Keldysh-Parameter $\gamma$ [34] abgeschätzt werden: $\gamma = \sqrt{|E_{ion}|/(2U_p)}$. Er entspricht dem Verhältnis der (abgeschätzten) Tunnelzeit zur halben Laserperiode. Für $\gamma \gg 1$ oszilliert das Feld viele Male während des Tunnelvorgangs, eine quasistationäre Betrachtung ist dann nicht gerechtfertigt. Für kleine $\gamma$ befindet man sich im Tunnelionisationsregime. Im Experiment bei ponderomotiven Energien um 6eV und den schweren Edelgasen mit $E_{\text{ion}} = 12$eV (Xe) bis 15.7eV (Ar) liegt $\gamma$ um 1 und obige Annahme zeigt sich als noch gerechtfertigt.

Die Wellenfunktion des Elektrons dispergiert im zweiten Schritt während seiner Exkursion, nach der der Schwerpunkt des Wellenpakets im Abstand $y(t_1,\xi)$ zurückkehrt:

$$\Psi_{t_1}(\mathbf{r}) = (a_0\sqrt{\pi})^{-3/2}\exp\left(-[x^2+(y-y(t_1,\xi))^2+z^2]/(2a(t_1)^2)\right) \tag{3.11}$$

Die Breite $a(t_1)$ zur Rückkehrzeit $t_1$ ergibt sich zu $a(t_1) = a_0^2 + (t_1-t_0)^2/a_0^2$. Damit läßt sich die relative Überlappung berechnen:

$$R = \exp\left(\frac{y(t_1,\xi)^2}{a(t_1)^2 + a_{|g\rangle}^2}\right) \tag{3.12}$$

**Tunnelionisation und Quellenstärke**

Erhöht man die Elliptizität des Laserpulses in Gl. 3.5, vermindert sich die maximale Feldamplitude: $E_{0,max} \propto E_0/\sqrt{1+\xi^2}$. Dies führt zu einer geringeren Ionisationswahrscheinlichkeit im ersten Schritt des Mehrstufenmodells (Quellenstärke). Dementsprechend gehen die Signale von ATI, NSDI und HHG nicht nur wegen des größer werdenden Stoßparameters zurück, sondern auch aufgrund der Abnahme der Quellenstärke.

Für die Tunnelionisation ergibt sich die Ionisationswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit vom elektrischen Feld aus der Ammosov-Delone-Krainov-Tunnelrate (ADK-Rate). Sie beruht auf der von Landau [41] behandelten Ionisationsrate für ein Wasserstoffatom

im statischen elektrischen Feld. Eine Erweiterung auf alternierende elektrische Felder durch Perelomov [42] wurde 1986 von Ammosov et al. [43] durch eine Vereinfachung der Koeffizienten auf komplexere Atome und Ionen verfeinert.

Die ADK-Rate hat sich in der Beschreibung der Ionisationsraten sehr gut bewährt. Wir gehen hier von der ursprüngliche Form von Landau und Lifschitz im statischen elektrischen Feld aus:

$$W_{dc} = 4\frac{(2I_p)^{5/2}}{E}\exp\left(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3E}\right) \tag{3.13}$$

Im Modell bestimmt die zyklusgemittelte Ionisationsrate die Quellenstärke $Q = \langle W_{dc}\rangle_t$.

### Elliptizitätsverteilung

Die Kombination von relativer Überlappung R und Quellenstärke $Q$ ergibt die Abhängigkeit des Signals $S(\xi)$ von der Elliptizität:

$$S(\xi) = R \cdot Q \tag{3.14}$$

Abb. 3.4 zeigt $S(\xi)$ bei jeweils etwa der halben Sättigungsintensität von Argon und Xenon.

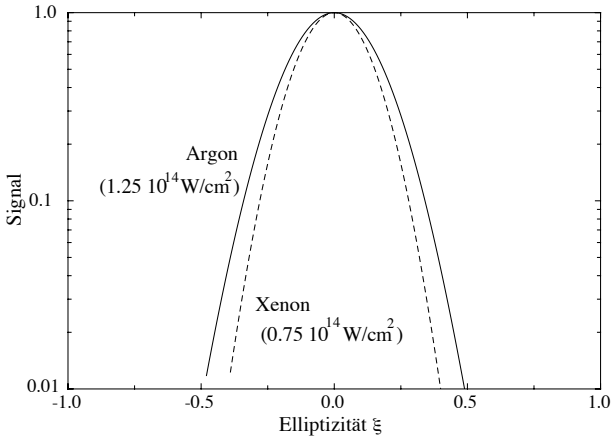


Abbildung 3.4: Theoretische Elliptizitätsverteilungen für Xenon und Argon .

# Kapitel 4

# Keldysh-Theorie

In den Kapiteln 6, 7 und 8 werden Messungen vorgestellt, die eine quantenmechanische Beschreibung des Vorgangs der Above-threshold Ionisation erfordern. Dazu soll in diesem Kapitel eine Zusammenfassung einer Variante der Keldysh-Theorie gegeben werden, die auf Lewenstein zurückgeht [45]. Bis auf die verbleibende Quadratur liefert sie analytische Ergebnisse und ermöglicht derzeit die beste Basis einer physikalischen Deutung aller drei beobachteten Effekte (ATI, NSDI und HHG).

Für den Fall intensiver Laserfelder wird der Einfluss des Laserfeldes so stark, dass ein störungstheoretischer Zugang nicht mehr möglich ist. Es bleibt nur noch die Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung (TDSE) eines einzelnen, im Potential $V(\mathbf{r})$ gebundenen Elektrons im Laserfeld $E(t)$:

$$i\hbar\frac{\partial\Psi(\mathbf{r},t)}{\partial t} = H\Psi(\mathbf{r},t) \tag{4.1}$$

mit dem Hamiltonoperator

$$H(t) = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} - e\mathbf{r}E(t) + V(\mathbf{r}). \tag{4.2}$$

Für den Fall der ATI berechnet sich die Übergangswahrscheinlichkeit eines Photoelektrons vom Grundzustand $\Psi_0(t)$ in seinen gestreuten Endzustand $\psi_\mathbf{p}(t)$ aus dem Betragsquadrat des Matrixelements $|M_\mathbf{p}|^2$ mit:

$$M_\mathbf{p} = \lim_{t\to\infty}\langle\Psi_\mathbf{p}(t)|\Psi(t)\rangle \tag{4.3}$$

$\psi_\mathbf{p}(t)$ ist dabei der atomare Zustandsvektor des Elektrons, dessen Impuls $\mathbf{p}$ im Experiment über die Flugzeit zum Detektor gemessen wird und $\Psi(t)$ die Wellenfunktion nach

der Wechselwirkung mit dem Laser. Keldysh, Faisal und Reiss lieferten wichtige Beiträge zur Berechnung des nach ihnen benannten KFR-Matrixelements mit Hilfe der Stark-Feld-Approximation [34, 46, 47]. Es wurde von W. Becker im verallgemeinerten KFR-Matrixelement um den Aspekt der Rückstreuung erweitert [48].

Für den Fall der HHG bestimmt das atomare Dipolmoment

$$d(t) = \langle \Psi(t)|x|\Psi(t)\rangle \tag{4.4}$$

die atomare Antwort auf den einfallenden Laserstrahl. Durch Fouriertransformation erhält man aus ihr das emittierte Spektrum:

$$\sigma \propto |d(\omega)|^2 = |(2\pi)^{-1}\int_{-\infty}^{+\infty} dt\, d(t)\exp(i\omega t)|^2 \tag{4.5}$$

Die Keldysh-Theorie bietet einen ähnlichen Zugang zum atomaren Dipolmoment und zum KFR-Matrixelement. Im folgenden wird die Berechnung des verallgemeinerten KFR-Matrixelements für direkte und rückgestreute Elektronen vorgestellt. Anschließend wird es mit Hilfe von Wirkungsintegralen formuliert. Diese ermöglichen auch einen einfachen Zugang zur atomaren Antwort der HHG, im speziellen zur atomaren Phase in Abhängigkeit von der Laserintensität.

## 4.1 Verallgemeinertes Keldysh-Matrixelement

Der Grundzustand $\Psi_0(t')$ ist durch den Zeitentwicklungsoperator $U(t,t')$ mit der Wellenfunkion $\Psi(t)$ zum Zeitpunkt t verbunden. Dabei löst $U(t,t')$ die Schrödingergleichung Gl. 4.1.

Als Ausgangspunkt für die KFR-Näherung ergibt sich damit das folgende Matrixelement $M_{\mathbf{p}}$:

$$M_{\mathbf{p}} = \lim_{\substack{t\to\infty \\ t'\to-\infty}} \langle \Psi_{\mathbf{p}}(t)|U(t,t')|\Psi_0(t')\rangle, \tag{4.6}$$

Der Hamiltonoperator $H(t)$ aus Gl. 4.2 lässt sich in den atomaren Hamiltonoperator $H_a(t)$ und die Hamiltonfunktion des Elektrons im Feld $H_f(t)$ aufgliedern:

$$H_a(t) := H_{\text{Atom}}(t) = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(\mathbf{r}) \tag{4.7}$$

$$H_f(t) := H_{\text{Feld}}(t) = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} - e\mathbf{r}E(t), \tag{4.8}$$

Es beschreiben dann $H_I(t) = H(t) - H_a(t) = -e\mathbf{r}E(t)$ die Wechselwirkung des Elektrons mit dem Laserfeld und $V(\mathbf{r}) = H(t) - H_f(t)$ den Einfluss des atomaren Potentials. Die Schrödingergleichungen für $H_a(t)$ und $H_f(t)$ haben analytische Lösungen: Zum einen den atomare Zeitentwicklungsoperator $U_a$, zum anderen der Volkovoperator $U_f$. Zu ihm sind die Volkovfunktionen $\left|v_\mathbf{p}\right\rangle$ Eigenfunktionen: $U_f(t,t')\left|v_\mathbf{p}(t')\right\rangle = \left|v_\mathbf{p}(t)\right\rangle$.

## Das Matrixelement für direkte Elektronen

Die Berechnung erfolgt mit Hilfe der Dyson-Gleichung. Sie lautet für $U$ und $U_a$ bzw. $U_f$ in Integralform:

$$U(t,t') = U_{a,f}(t,t') - \frac{i}{\hbar}\int_{t'}^{t} dt_0 U(t,t_0)[H(t_0) - H_{a,f}(t_0)]U_{a,f}(t_0,t') \tag{4.9}$$

Ersetzt man nun in Gl. 4.6 den Zeitentwicklungsoperator durch Gl. 4.9 für $U_a$, so erhält man für das Matrixelement:

$$\begin{aligned} M_\mathbf{p} &= \lim_{\substack{t\to\infty \\ t'\to-\infty}} \left\langle \Psi_\mathbf{p}(t)\right| U_a(t,t')\left|\Psi_0(t')\right\rangle \\ &\quad -\frac{i}{\hbar}\int_{-\infty}^{t} dt_0 \left\langle \Psi_p(t)\right| U(t,t_0)[H(t_0) - H_a(t_0)]U_a(t_0,t')\left|\Psi_0(t')\right\rangle \end{aligned} \tag{4.10}$$

Der erste Term verschwindet aufgrund der Orthogonalität von Streuzustand $\Psi_p(t)$ und ungestörtem gebundenem Zustand $\Psi_0(t)$ für $t \to +\infty$, d.h. nach Ausklingen des Laserfeldes, und da $\Psi_0(t')$ Eigenvektor zu $H_a(t)$ ist: $U_a(t,t')\left|\Psi_0(t')\right\rangle = \left|\Psi_0(t)\right\rangle$.

### Stark-Feld-Approximation in der Keldysh-Theorie

In der Keldysh-Näherung wird der exakte Zustand zum Zeitpunkt $t_0$ $\left\langle \Psi_\mathbf{p}(t)\right| U(t,t_0) = \left\langle \Psi_\mathbf{p}(t_0)\right|$ durch den Volkovzustand $\left\langle v_\mathbf{p}(t_0)\right|$ approximiert. Damit lässt sich das Matrixelement aus Gl. 4.10 schreiben als

$$M_\mathbf{p}^{(0)} = -\frac{i}{\hbar}\int_{-\infty}^{\infty} dt_0 \left\langle v_\mathbf{p}(t_0)\right| H_I(t_0)\left|\Psi(t_0)\right\rangle, \tag{4.11}$$

Die Keldysh-Näherung unterteilt den Streuvorgang so, dass vor der Wechselwirkung $H_I(t_0)$ der Zustand des Elektrons allein durch die atomare Bindung und danach allein

durch das Feld bestimmt wird. Dies ist für stark gebundene Elektronen und intensive Felder erfüllt und entspricht der Idee der Stark-Feld-Approximation.

Die Interpretation des Matrixelements $M_{\mathbf{p}}^{(0)}$ in Gl. 4.11 steht in Analogie zum klassichen Modell: Zum Zeitpunkt $t_0$ der Wechselwirkung $H_I$ wird das Elektron vom Grundzustand ins Kontinuum gebracht. Dieser Übergang vom gebundenen Zustand in einen Volkovzustand beschreibt den direkten Ionisationsprozess, und die dabei ionisierten Elektronen werden als *direkte* Elektronen bezeichnet.

### Kurzreichweitiges Potential

Vereinfacht man weiter, indem man ein kurzreichweitiges Potential annimmt, ist eine auf das Potential bezogene Darstellung vorzuziehen. Dafür ersetzt man die Wechselwirkung durch $H_I = V + H_f(t) - H_a(t)$. Wendet man dann die Operatoren $H_f(t_0)$ und $H_a(t_0)$ jeweils nach links bzw. rechts an und vereinfacht mit Hilfe der Lösungen der Schrödingergleichungen, so läßt sich das KFR-Matrixelement umschreiben zu:

$$M_{\mathbf{p}}^{(0)} = -\frac{i}{\hbar}\int_{-\infty}^{\infty} dt_0 \left\langle v_{\mathbf{p}}(t_0)\right| V \left|\Psi(t_0)\right\rangle, \tag{4.12}$$

Für ein δ-Potential kann die räumliche Integration einfach ausgeführt werden. Die verbleibende Integration kann für eine ebene Welle analytisch durchgeführt werden, und sie ergibt eine Summe über verallgemeinerte Besselfunktionen [48].

## Das Matrixelement für rückgestreute Elektronen

Will man den Prozess der Rückstreuung berücksichtigen, ist eine genauere Näherung notwendig. Dazu entwickelt man $U(t,t_0)$ in Gl. 4.10 nochmals mit Hilfe der Dyson-Gleichung, diesmal für $U_f(t,t_0)$. Vernachlässigt man wiederum im Sinne der Keldysh-Näherung im Zeitentwicklungsoperator $U(t,t_0)$ und im Streuzustand $\Psi_{\mathbf{p}}(t)$ das atomare Bindungspotential durch Einsetzen von $U_f(t,t_0)$ bzw. $v_{\mathbf{p}}(t)$, so erhält man:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} \;=\; & -\frac{i}{\hbar}\int_{-\infty}^{\infty} dt_0 \underbrace{\left\langle \Psi_{\mathbf{p}}(t)\right| U_f(t,t_0)}_{\approx \left\langle v_{\mathbf{p}}(t_0)\right|} H_I(t_0)\left|\Psi(t_0)\right\rangle \\ & -\frac{1}{\hbar^2}\int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \underbrace{\left\langle v_{\mathbf{p}}(t)\right| U(t,t_1)}_{\approx \left\langle v_{\mathbf{p}}(t_1)\right|} \underbrace{\left[H(t_1) - H_f(t_1)\right]}_{=V} U_f(t_1,t_0) H_I(t_0)\left|\Psi(t_0)\right\rangle \end{aligned}$$

$$=: \; M_{\mathbf{p}}^{(0)} + M_{\mathbf{p}}^{(1)}. \tag{4.13}$$

Der Rückstreuprozess ist im Beitrag des zweiten Terms $M_{\mathbf{p}}^{(1)}$ enthalten:

$$M_{\mathbf{p}}^{(1)} = -\frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \left\langle v_{\mathbf{p}}(t_1) \right| V \, U_f(t_1,t_0) H_I(t_0) \left| \Psi(t_0) \right\rangle \tag{4.14}$$

Dabei erkennt man wieder die zeitliche Gliederung des Ionisationsprozesses mit Rückstreuung: Zum Zeitpunkt $t = t_0$ findet eine Wechselwirkung $H_I(t_0)$ mit dem elektrischen Feld des Lasers statt. Durch sie gelangt das Elektron ins Kontinuum. Ab jetzt wird die atomare Bindung vernachlässigt, und der Volkovpropagator $U_f$ beschreibt die sich anschliessende Entwicklung bis zum Zeitpunkt $t = t_1$, an dem eine weitere Wechselwirkung, diesmal mit dem atomaren Potential $V$, stattfindet. Das Elektron verlässt nun das Atom. Sein Impuls im endgültigen Volkovzustand $v_{\mathbf{p}}(t_1)$ wird im Experiment gemessen.

## 4.2 Darstellung mit Pfadintegralen

Angesichts der erfolgreichen Deutung der wichtigsten Effekte durch klassische Trajektorien liegt die Anwendung des Feynman'schen Pfadintegrals nahe, wenn eine quantenmechanische Beschreibung gewünscht oder erforderlich ist. In dieser der Schrödinger Gleichung äquivalenten Beschreibung wird die Verwandtschaft der Pfade mit den klassischen Bahnen besonders deutlich, und damit wird der Zusammenhang zum klassichen Modell offensichtlich [49]. Dazu schreibt man den Zeitentwicklungsoperator in Gl. 4.3 als

$$U(\mathbf{r}\,t, \mathbf{r}'\,t') = \int_{(\mathbf{r}',t') \to (\mathbf{r},t)} D[\mathbf{r}(\tau)] \exp[iS_{\text{class}}] \tag{4.15}$$

Die Übergangswahrscheinlichkeit von $(\mathbf{r}'\,t')$ nach $(\mathbf{r}\,t)$ ergibt sich durch Aufintegration aller mit den Randbedingungen vereinbaren Pfade, wobei diese eine Phase entsprechend ihrer klassischen Wirkung $S_{\text{class}}$ zugeordnet bekommen. Als Beispiel für die klassische Wirkung $S_{\text{class}}$ sei die eines Elektrons im elektrischen Feld $E(t) = \partial_t \mathbf{A}(t)$ mit dem zeitabhängigen Vektorpotential $\mathbf{A}(t)$ gegeben. Sie wird durch das Wirkungsintegral über die Lagrange-Funktion $L = T + e\mathbf{r} \cdot E(t)$ des Problems bestimmt:

$$S_{\text{class}} = \int d\tau L[\mathbf{r}(\tau)] \tag{4.16}$$

Die Stark-Feld-Approximation und die Näherung eines kurzreichweitigen Potentials in Form eines δ-Potentials werden wieder durchgeführt. Das Matrixelement ist dann ein

fünfdimensionales Integral über die möglichen Impulse $\mathbf{k}$ des Elektrons, über seine Ionisationszeitpunkte $t_0$ und seine Rückkehrzeiten $t_1$. Diese fünf Größen bestimmen die Phase im Exponenten des verbleibenden Integranden in Form der klassischen Wirkung, die zu diesem möglichen Ionisationsweg gehört:

$$M_{\mathbf{p}} \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_0^{\infty} d(t_1 - t_0) \int d^3k \exp[iS(t_1, t_0, \mathbf{k})] \tag{4.17}$$

Die Wirkung lautet:

$$S(t_1, t_0, \mathbf{k}) = \underbrace{-\int_{-\infty}^{t_0} d\tau |E_{\mathrm{IP}}|}_{(i)} \underbrace{-\frac{1}{2m}\int_{t_0}^{t_1} d\tau (\mathbf{k} - e\mathbf{A}(\tau))^2}_{(ii)} \underbrace{-\frac{1}{2m}\int_{t_1}^{\infty} d\tau (\mathbf{p} - e\mathbf{A}(\tau))^2}_{(iii)} \tag{4.18}$$

Sie untergliedert sich in die drei Schritte:

(i) Wirkung bis zur Ionisation,

(ii) Wirkung zwischen Ionisation und (eventueller) Rückkehr, d.h. auf einer geschlossenen Trajektorie mit Impuls $\mathbf{k} = \frac{1}{t_1 - t_0}\int_{t_0}^{t_1} d\tau e\mathbf{A}(\tau)$, und

(iii) Wirkung nach der elastischen Streuung.

## Pfadintegralauswertung mittels Sattelpunktsanalyse

Das Matrixelement aus Gl. 4.17 kann durch eine Sattelpunktsanalyse berechnet werden. Dabei gehört zu jeder komplexen Trajektorie ein Sattelpunkt, d.h. ein Punkt stationärer Phase. Die Sattelpunkte sind durch die Gleichung $\partial_q S(q) = 0$ gegeben, die die Ionisationszeit $t_0$, die Rückkehrzeit $t_1$ und den kanonischen Impuls $\mathbf{k}$ einer Trajektorie festlegen. Es ergeben sich die drei Sattelpunktsgleichungen:

$$(\mathbf{k} - e\mathbf{A}(t_0))^2 = -2m|E_{\mathrm{IP}}| \tag{4.19}$$

$$(\mathbf{k} - e\mathbf{A}(t_1))^2 = (\mathbf{p} - e\mathbf{A}(t_1))^2 \tag{4.20}$$

$$(t_1 - t_0) \cdot \mathbf{k} = \int_{t_0}^{t_1} d\tau e\mathbf{A}(\tau). \tag{4.21}$$

Physikalisch beschreibt die Gleichung (4.19) die Energieerhaltung beim Tunnelprozess vom Grundzustand ins Kontinuum, Gleichung (4.20) die elastische Streuung am Ionenrumpf (ebenfalls Energieerhaltung) und Gleichung (4.21) die Bedingung, dass das Elektron zur Zeit $t_1$ zum Ausgangspunkt zurückkehrt: $\mathbf{r}(t_1) = \mathbf{r}(t_0)$. Die Energieerhaltung

beim Tunnelvorgang erfordert eine komplexe Zeit, so dass sich komplexe Trajektorien ergeben. Der Realteil der komplexen Trajektorien entspricht in etwa der klassischen Trajektorie und ihre Phase erlaubt eine Beschreibung von Interferenzphänomenen.

Das Matrixelement kann jetzt als Summe über die Beiträge der relevanten Trajektorien geschrieben werden:

$$M_{\mathbf{p}} \propto \sum_i \left( \frac{(2\pi i\hbar)^5}{\det(\partial^2 S/\partial q_j \partial q_k)_{j,k=1,\ldots,5}} \right)^{1/2} \exp[iS(t_{S_i}, t'_{S_i}, \mathbf{k}_{S_i})] \tag{4.22}$$

Damit ist das Feynman'sche Pfadintegral mit Hilfe der Strong-field-Approximation und der Sattelpunktsanalyse auf eine Summe über wenige Trajektorien reduziert worden. In Kap. 6 wird eine Messung vorgestellt, bei der Beiträge einzelner Trajektorienpaare im ATI-Plateau identifiziert werden können [50].

Die Phase der Trajektorien ermöglicht ihre Interferenz. Ein Interferenzeffekt bei direkt ionisierten Elektronen für elliptische Polarisation wurde von Paulus et al. 1997 in Winkelverteilungen entdeckt [51]. Die Messung der Interferenz von direkten und rückgestreuten Elektronen wird in Kap. 7 vorgestellt [52].

Ein sehr starker Interferenzeffekt, bei dem eine große Anzahl von Trajektorien beiträgt, auch solche mit sehr langen Reisezeiten, wird in Kap. 8 beschrieben [53] und nochmals im Ausblick im Zusammenhang mit neuesten Messungen mit 6fs-Laserpulsen diskutiert.

## 4.3 Atomares Dipolmoment

Die Erzeugung hoher Harmonischer in Gasen lässt sich in zwei Prozesse unterteilen: Die Emission von Strahlung der einzelnen Atome aufgrund der einfallenden Laserstrahlung (Atomare Antwort, AR) und die Beeinflussung durch die kollektive Emission aller Atome im Fokus (Propagation im Medium, [54]). Ersteres wird in der klassischen Elektrodynamik in der Leistung der Dipolstrahlung zusammengefasst $P(t) = \omega^4/(6\pi\varepsilon_0 c^3)|d(t)|^2$. Zur Beschreibung der Propagation werden die atomaren Dipolmomente als Quelle für die sich aus den Maxwellgleichungen ergebende Wellengleichung herangezogen.

Betrachtet man die Polarisation in einem isotropen Gas unter Einstrahlung mit der Frequenz $\omega$, ist aus Symmetriegründen die Frequenzkonversion zu geraden Harmonischen mit den Frequenzen $2n\omega$ ($n \in N$) verboten, da eine Umkehr des elektrischen Feldes auch einen Vorzeichenwechsel in der Polarisation erfordert. Das ist nur möglich, wenn

für gerade Ordnungen die Suszeptibilitäten $\chi^{(2n)}$ zu Null werden. Somit ergeben sich die Fourierkomponenten des Dipolmoments zu $d_q = \chi^{(q)} E^q$ mit $q = 2n+1$. Es werden also nur die ungeraden Harmonischen der Ordnung q erzeugt.

### Atomare Phase im Lewenstein-Modell

Das Lewenstein-Modell für HHG wurde um den Aspekt der Propagation erweitert. Es ist dadurch zu einem umfassenden Modell zur Beschreibung der Erzeugung von Harmonischen geworden. Seine Entwicklung zeigt sich in den aufeinander aufbauenden Veröffentlichungen seit Beginn der 90er Jahre [55, 56, 45, 57]. Die Stark-Feld-Näherungen und die Annahme eines einzigen aktiven Elektrons (single active electron approximation, SAE) machen die TDSE Gl. 4.1 für hohe Intensitäten lösbar ($U_p \geq I_p$) und damit die Berechnung der atomaren Dipolstrahlung möglich. Die Vernachlässigung des Bindungspotentials schränkt das Modell auf hohe Harmonische ($\hbar\omega_q \geq I_p$), d.h. hochenergetische Rückkehrelektronen, ein.

Einen aktuellen Überblick des Modells inklusive Propagation gibt [58]. Die Formulierung mit Wirkungsintegralen erleichtert auch hier den Zugang zum Verständnis in der Erzeugung von Harmonischen. Dabei wird deutlich, wie eng die atomare Phase als Teilaspekt der atomaren Antwort mit der Phasenanpassung im Medium verknüpft ist.

Die q-te Fourierkomponente $d_q$ des totalen atomaren Dipolmoments korrespondiert zur Stärke der Harmonischen der Ordnung q im Emissionsspektrum:

$$d(t) = \sum_{q\,\text{ungerade}} d_q \exp(-iq\,\omega t) + c.c. \tag{4.23}$$

Die Fourierkomponenten lassen sich als Summe über die relevanten Trajektorien schreiben:

$$d_q = \sum_{\text{relev. Traj.}} (\ldots) \exp(i(q\,\omega t_1 - S_q(t_1)) \tag{4.24}$$

Jede Trajektorie wird charakterisiert durch:

(i) ihre Startzeit $t_0$,

(ii) ihrer Rückkehrzeit (Zeitpunkt der Rekombination) $t_1$ und

(iii) den kanonischen Impuls des Elektrons $\mathbf{p}_s(t_1, t_1 - t_0)$ zur Rückkehrzeit.

Für die q-te Harmonische erhält man die zu einer Trajektorie gehörende atomare Phase aus: $\varphi_{q,Traj.} = q\,\omega t_1 - S_q(t_1)$. Sie setzt sich zusammen aus der Phase des Harmonischen-Photons $q\omega t_1$ relativ zur Fundamentalen und aus der Phase der propagierten Wellenfunktion des Elektrons (seiner klassischen Wirkung) jeweils zur Rückkehrzeit des Elektrons. Letztere kann durch das Produkt aus ponderomotivem Potential und Reisezeit des Elektrons $U_p\,(t_1 - t_0)$ grob angenähert werden [59]. Sie ist damit linear von der Intensität abhängig und wird im folgenden als intensitätsabhängige Dipolphase $\varphi_{\text{int}} = -S_q(t_1)$ bezeichnet.

Abb. 4.1 zeigt den Verlauf des Dipolmoments der 45. Harmonischen in Neon und die zur längeren Trajektorie gehörende Phase $\varphi_{\text{int}}$ als Funktion der Intensität. Für niedrige Intensitäten steigt die Dipolintensität steil an und weist keine Struktur auf, da die Harmonische im Cutoff liegt und nur eine Trajektorie zu ihr beiträgt. Für höhere Intensitäten sättigt der Anstieg und die Dipolintensität zeigt viele Interferenzen aufgrund der beiden beitragenden Trajektorien. Berechnungen der Phase $\varphi_{\text{int}}$ haben gezeigt, dass das Verhalten nahezu unabhängig vom Gas ist, und die Steigung am Cutoff zwischen -3.15 und -3.25rad/eV und im Plateau zwischen -6.1 und -5.7rad/eV variiert [57].

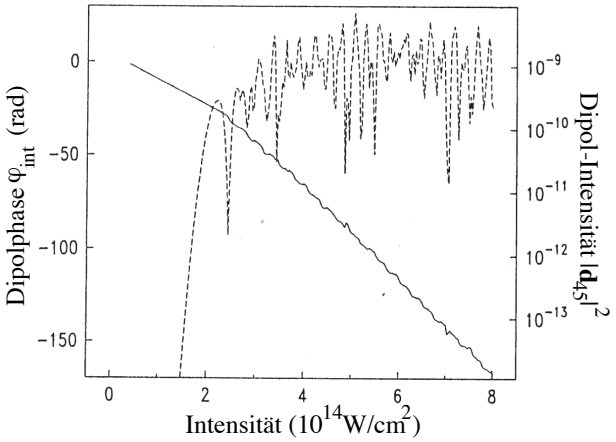


Abbildung 4.1: Die Dipolintensität der 45. Harmonischen in Neon und die Dipolphase $\varphi_{int}$ sind für die Trajektorie mit der längeren Rückkehrzeit $t_1 - t_0$ in Abhängigkeit von der Intensität aufgetragen [59].

## 4.4 Quantentrajektorien

Vor kurzem konnten die Beiträge der relevanten Trajektorien im Vergleich mit den numerischen Lösungen für ATI und HHG isoliert werden [49, 60] und somit die von Lewenstein vorgeschlagene Deutung der Keldysh-Rate mit Hilfe von Feynman-Pfadintegralen für ATI durchgeführt werden. Entscheidend ist hier, dass zur Reproduktion der exak-

ten numerischen Lösung, z.B. für den Fall elliptischer Polarisation, auch Trajektorien mit Rückkehrzeiten nach einigen Perioden des elektrischen Feldes hinzugezogen werden müssen. Die Verbindung der Keldysh-Theorie zum klassischen Modell wird in Abb. 4.2 deutlich. Sie zeigt die drei wichtigsten von Kopold gefundenen Paare von Quantentrajektorien für elliptische Polarisation, die den Hauptbeitrag zu den jeweiligen HHG- und ATI-Spektren liefern. Das Atom befindet sich bei Re x = 0. Der Beginn der Trajektorie ist aufgrund des Tunnelvorgangs etwas vom Ursprung entfernt. Im obersten Bild (HHG-Cutoff bei n=67) läuft die Trajektorie erst vom Ursprung weg und kehrt dann zu ihm zurück. Dies geschieht innerhalb einer Periode des Feldes. Für n=35 umrundet das Elektron das Atom einmal, kommt also aus entgegengesetzter Richtung zurück. Für n=51 passiert das Elektron während einer zusätzlichen halben Periode das Atom ein zweites Mal, bevor es wieder auf das Atom trifft. Die ATI-Trajektorien vor der Rückstreuung verhalten sich ähnlich denen für HHG.

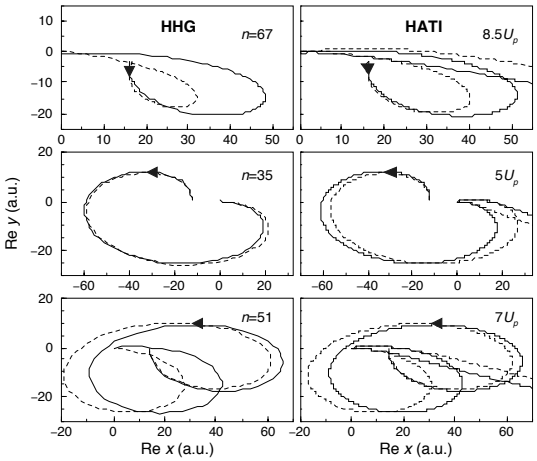


Abbildung 4.2: Realteile der Paare von Quantentrajektorien für HHG und ATI mit zunehmender Reisezeit $t_1 - t_0$. Die Ordnung n der Harmonischen bzw. die Energie der gestreuten Elektronen der abgebildeten Trajektorien sind angegeben [49].

# Kapitel 5

## Messung der Abhängigkeit der Above-threshold Ionisation, der Erzeugung hoher Harmonischer und der nicht-sequentiellen Doppelionisation von der Elliptizität des Laserpulses

In diesem Kapitel werden Messungen vorgestellt, die die Abhängigkeit der Phänomene HHG, ATI und NSDI von der Elliptizität des einfallenden Lichtes vergleichen und damit die enge Verwandtschaft von ATI, NSDI und HHG testen. Dazu wurden Elliptizitätsverteilungen (EDs) aufgenommen, d.h. man misst die Abhängigkeit der ATI- und HHG-Plateaus, sowie der doppelt geladenen Ionen von der Elliptizität $\xi$ der Laserpolarisation. Wie in Kap. 3.3 dargestellt, werden durch das elliptisch polarisierte elektrische Feld die Trajektorien so beeinflusst, dass die Elektronen abgelenkt werden und bei ihrer Rückkehr nicht mehr direkt auf den Ionenrumpf treffen - die drei möglichen Prozesse werden entsprechend unterdrückt. Das semiklassische Modell aus Kap. 3.3 läßt folgenden Einfluß der elliptische Polarisation erwarten: (i) Die funktionale Abhängigkeit von $\xi$ sollte für ATI, NSDI und HHG ähnlich sein. (ii) Die EDs sollten bei linearer Polarisation ($\xi = 0$) ein Maximum aufweisen, und sie sollten mit wachsender Elliptizität schnell kleiner werden.

Der Einfluss der Elliptizität auf die Erzeugung der Harmonischen wurde von Budil et al. untersucht [61]. Seine Messungen mit 150fs langen Pulsen bestätigten die erwartete Abhängigkeit (ii): Je höher die Ordnung der Harmonischen, desto schneller geht das Signal mit zunehmender Elliptizität zurück. Eine Vergleichsmessung zur Klärung des Mechanismus der NSDI wurde für HHG und NSDI in He bzw. Neon von Dietrich et al. [62] durchgeführt. Allerdings verwendeten sie sowohl unterschiedliche Laser als

auch unterschiedliche atomare Elemente für das HHG- und NSDI-Experiment. Der dynamische Bereich der Messungen umfasste nur eine Größenordnung. Daher konnte die Verwandtschaft nur grob bestätigt werden.

Hier wurde bei der experimentellen Durchführung besonders darauf geachtet, dass die Messungen soweit wie möglich unter identischen Bedingungen stattfinden. Die Grundlage dafür ist das in Kap. 2 vorgestellte Lasersystem, das eine gleichzeitige Durchführung der ATI-, NSDI- und HHG-Experimente erlaubt. Bis auf den Druck im Wechselwirkungsraum - HHG benötigt einen vergleichsweise hohen Druck - unterscheiden sich die experimentellen Gegebenheiten nicht. Diese wurden so gewählt, dass sich die theoretischen Aspekte möglichst einfach gestalten: (i) Die Intensität wurde so niedrig wie möglich gehalten. Sie ist begrenzt durch die Zählraten der doppelt geladenen Ionen bzw. der Elektronen im Plateau-Bereich. Dadurch wird der Einfluss des sogenannten Volumeneffekts - d.h. die Beiträge von Fokalvolumina mit unterschiedlichen Intensitäten (siehe S.4) - minimiert. (ii) Bei ATI und HHG werden jeweils die höchsten Ordnungen verglichen. Diese basieren auf sehr ähnlichen Trajektorien und werden so gleichermaßen vom elliptischen Feld beeinflußt.

### Messungen

Abb. 5.1 zeigt die in Krypton gemessenen Elliptizitätsverteilungen (EDs) für ATI, HHG und NSDI im Vergleich. Die Zählrate wird logarithmisch über die Polarisation $\xi$ aufgetragen. Das Signal ist jeweils auf 1 normiert. Maximales Signal tritt bei linearer Polarisation $\xi = 0$ auf. Der Bereich von $\xi = -1$ bis $\xi = +1$, entsprechend links- bzw. rechtszirkularer Polarisation, wurde in 72 Schritten durchfahren und das Signal über zwei Größenordnungen gemessen.

Oben in Graph (a) sind die EDs für die Photoelektronen mit Energien von 5eV bis 25eV dargestellt. Für niedrige Photoelektronenenergie werden die EDs mit zunehmender ATI-Ordnung schmaler. Im Plateau ändert sich die Breite der EDs dagegen nur wenig. Unten links in Graph (e) sind das Photoelektronenspektrum sowie das Harmonischen-Spektrum (HH 15 bis HH 21) für lineare Polarisation dargestellt. Aus den Cutoffs beider Spektren ergibt sich eine Intensität von ca. $(8 \pm 2) \cdot 10^{13}\mathrm{W/cm}^2$. Die EDs, die zu den Harmonischen im Spektrum gehören, werden in Graph (b) gezeigt. Mit steigender Ordnung werden sie nur leicht schmaler. In Graph (c) sind die Ionisationsraten gezeigt. Die Ionisationsrate einfach geladener Ionen nimmt ausgehend von linearer Polarisation ab, bis sie bei zirkularer Polarisation auf ein schwaches lokales Maximum ansteigt.

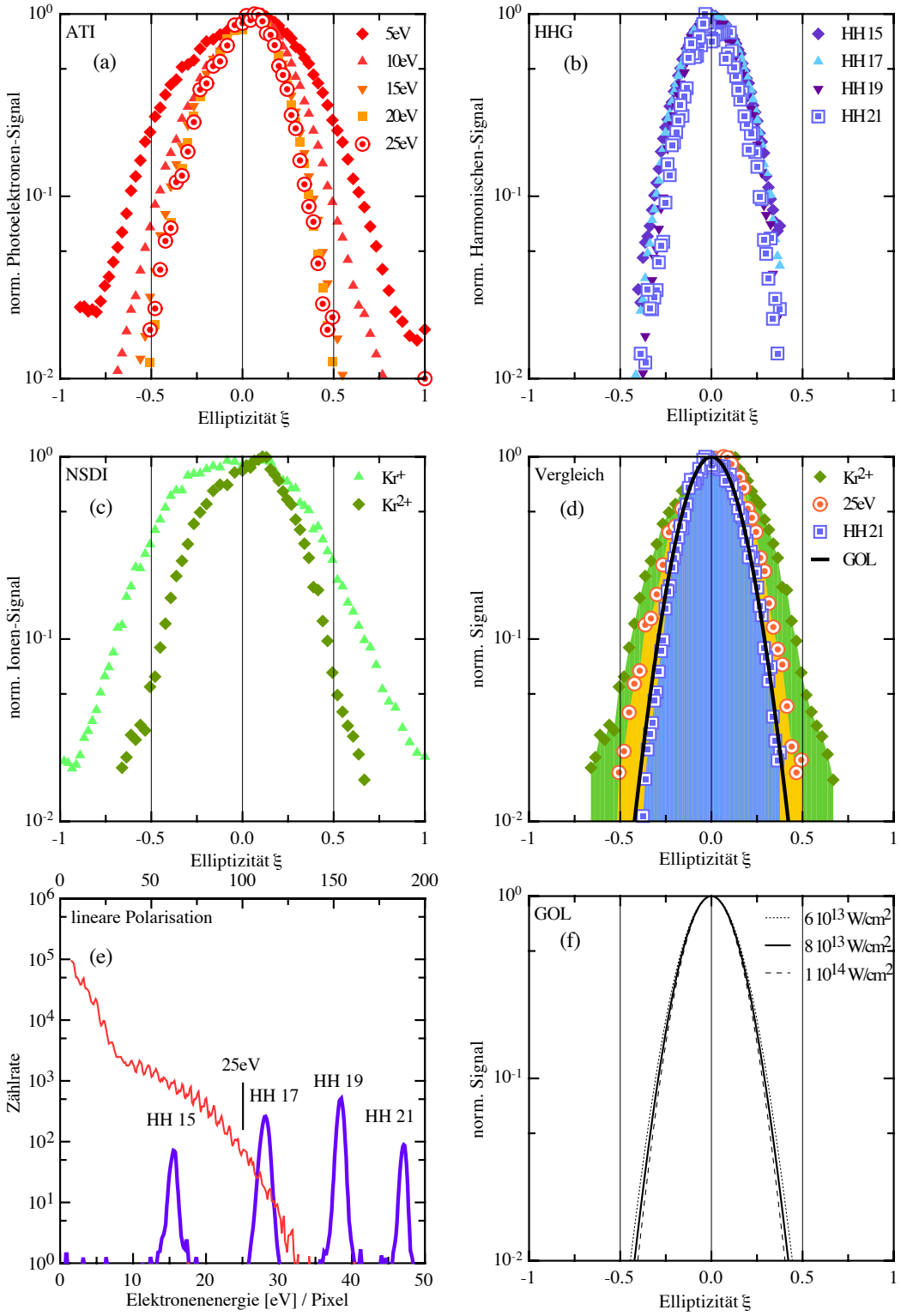


Abbildung 5.1: Elliptizitätsverteilung in Krypton für ATI, HHG und NSDI im Vergleich.

Dies Verhalten spiegelt sich in der ED der niederenergetischen (direkten) Elektronen (5eV) wieder. Die doppelt geladenen Ionen nehmen dagegen stark mit zunehmender Polarisation $\xi$ ab. Im Graph (d) sind die EDs der Photoelektronen mit 25eV und der 21. Harmonischen (beide im Plateau-Cutoff Übergangsbereich) sowie die ED für $Kr^{2+}$ übereinander gelegt und in Graustufen hinterlegt. Zusätzlich ist die sich aus dem semiklassischen Modell (GOL) ergebende rein atomare Abhängigkeit eingezeichnet. Sie entspricht in etwa der HHG-ED. ATI-ED und NSDI-ED sind beide etwas breiter. Das semiklassische Modell überschätzt also den Einfluss der Elliptizität und stellt eine untere Grenze dar. Alle drei Effekte HHG, ATI und NSDI zeigen somit im großen und ganzen die gleiche Abhängigkeit von der Elliptizität.

Das gleiche Bild ergibt sich für Argon und Xenon. In Abb. 5.2 werden entsprechend die drei Edelgase verglichen. Die Darstellung ist auf $|\xi| \leq 0.6$ eingeschränkt, und das Signal wurde diesmal linear aufgetragen. Entsprechend kommen die Unterschiede in den EDs deutlicher zum Vorschein. Je schwerer und damit je größer das Edelgas ist, desto breiter werden die Verteilungen, und desto größer wird die Abweichung der ATI-ED von der HHG-ED. Die Messungen in Argon wurden bei einer Intensität von ca. $(9 \pm 2) \cdot 10^{13} \mathrm{W/cm^2}$ und in Xenon von ca. $(6 \pm 2) \cdot 10^{13} \mathrm{W/cm^2}$ durchgeführt.

Zusammenfassend kann man sagen, dass erstmals eine simultane Messung der Elliptizitätsverteilungen von ATI, NSDI und HHG durchgeführt wurde. Die gemessene Abhängigkeit konnte näherungsweise mit einem semiklassischen Modell bestätigt werden. Es wurden quantitative Unterschiede in den EDs von ATI, NSDI und HHG sowie in den EDs von den verschiedenen Edelgasen festgestellt, die weitere Untersuchungen erfordern.

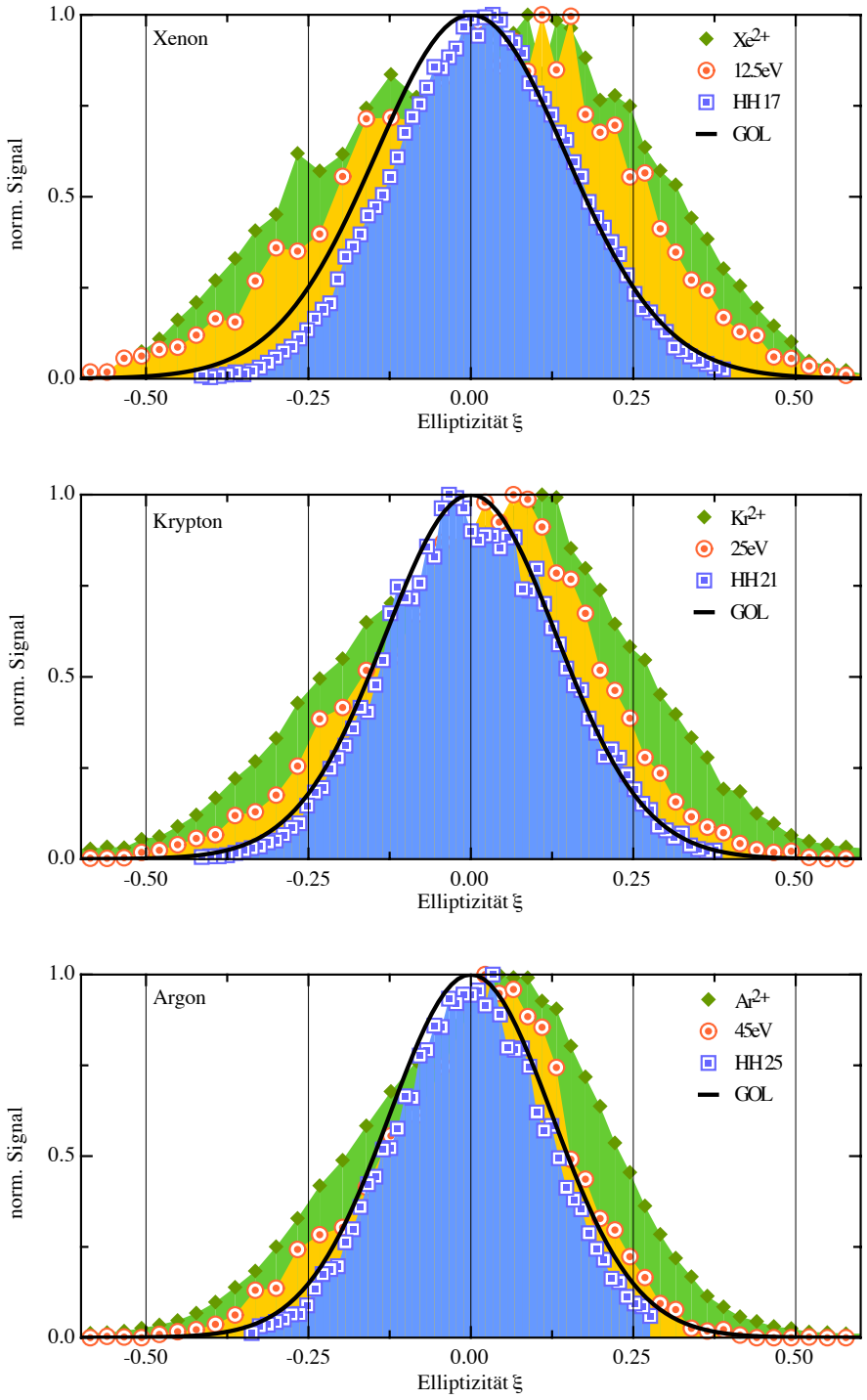


Abbildung 5.2: Elliptizitätsverteilung in Xenon, Krypton und Argon, jeweils für ATI, HHG und NSDI im Vergleich.

# Kapitel 6

# Identifikation von Quantentrajektorien im Experiment

In der im folgenden beschriebenen Messung ist es gelungen, für ein ATI-Spektrum die Beiträge einzelner Quantentrajektorien zur Photoelektronenrate zu identifizieren [50]. Dazu wurden die experimentellen Bedingungen so gewählt, dass die ATI-Elektronen in Gruppen zerlegt werden können, die jeweils von einem Paar von Trajektorien erzeugt wurden. Die Wahl von elliptischer Polarisation des Lichtfeldes erlaubt dabei eine Kontrolle der Elektronentrajektorien, da diese vom elektrischen Feld modifiziert werden. Dies hat zum einen Einfluss auf die im Feld gewonnene Energie und damit auf die letztendlich erreichbare Driftenergie der ATI-Elektronen. Zum anderen sind aber für die jeweiligen Trajektorien ganz bestimmte Anfangsbedingungen notwendig, deren Wahrscheinlichkeit den absoluten Beitrag zum Spektrum bestimmt. Diese beiden Aspekte sollen hier kurz erläutert werden, da sie die Grundlage zur Interpretation der Messung sind.

Im klassischen Modell in Kap. 3 ergibt sich der Cutoff des Plateaus für lineare Polarisation zu $10U_p$. Diese maximale Driftenergie ergibt sich für den Fall, dass das Elektron erst vom elektrischen Feld vom Ionenrumpf weggetrieben wird und dann auf dem Rückweg am Ionenrumpf rückstreut. Ebenso kann man im klassischen Modell die Cutoff-Energien für Elektronen berechnen, die erst nach mehrmaligem Passieren des Ionenrumpfs an diesem streuen. So führt die Streuung erst bei der zweiten Rückkehr zu einem Cutoff bei $7U_p$ und die bei der dritten zu einem Cutoff bei $8.5U_p$. Noch höhere Rückkehrzeiten führen zu Cutoff-Energien um $7U_p$. Für schwach elliptische Polarisation ändert sich die Abfolge der Cutoff-Energien nicht, wohl aber ändern sich deren absolute Werte, die aufgrund der fallenden maximalen Feldstärke kleiner werden.

Fordert man nun für elliptische Polarisation die Anfangsbedingung, dass das Elektron zum Ionenrumpf zurückkehrt, so ergibt sich, dass für die kürzeste Reisezeit das Elektron mit einer sehr hohen Anfangsgeschwindigkeit gegen das elektrische Feld in Richtung der kleinen Halbachse emittiert werden muss. Für höhere Rückkehrordnungen ist diese Anfangsgeschwindigkeit geringer und liegt zum Teil in Feldrichtung, so dass diese Prozesse wahrscheinlicher werden. Kombiniert man diese beiden Konsequenzen der elliptischen

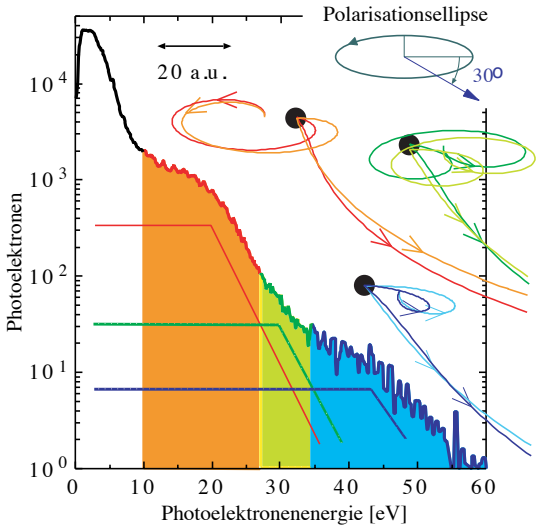


Abbildung 6.1: ATI-Spektrum bei elliptisch polarisiertem Licht bei einer Intensität von $8 \cdot 10^{13}$W/cm$^2$ [50]. Der Beobachtungswinkel in Bezug zur Polarisationsellipse und die theoretischen Ergebnisse in Form der Realteile der Trajektorien sowie den Cutoffs der Stufen wurden ebenfalls eingezeichnet.

Polarisation (Prozesswahrscheinlichkeit und Cutoff-Energie), wird man ein stufenförmiges ATI-Spektrum erwarten, dessen Stufentiefe durch die unterschiedliche Wahrscheinlichkeit für die Anfangsbedingungen der verschiedenen Bahnen gegeben ist. Die Stufenlänge ergibt sich aus den Cutoff-Energien der jeweiligen Trajektorien. Als experimentelle Parameter stehen die Elliptizität des einfallenden Laserpulses und der Beobachtungswinkel der Elektronen zu Verfügung. Abb. 6.1 zeigt ein ATI-Spektrum, gemessen in Xenon bei einer Elliptizität von $\xi = 0.36$ und beobachtet unter einem Winkel von 30° relativ zur großen Achse der Polarisationsellipse. Das Spektrum untergliedert sich in mehrere Stufen. Die in Kap. 4 vorgestellte Version der Keldysh-Theorie ermöglicht nun die direkte Zuordnung von Trajektorien-Paaren zu dieser Messung. Die erste Stufe bei 10eV ist direkten Elektronen zuzuordnen und fällt nicht in die hier angesprochene Thematik. Weitere ausgeprägte Stufen sind bei 20eV und 45eV zu erkennen. Die einzelnen Stufen können auf die Beiträge der Elektronentrajektorien zurückgeführt werden, deren Realteile in Abb. 6.1 eingezeichnet wurden. Das kurze Trajektorien-Paar mit der höchsten Cutoff-Energie weist die geringste Zählrate auf und trägt am wenigsten zum Spektrum bei. Die Theorie sagt zwischen den beiden angesprochenen Stufen eine weitere kleinere vorher.

Sie ist auch im Experiment bei 30eV leicht angedeutet.

Zusammenfassend läßt sich sagen, dass bei geschickter Wahl der äußeren Parameter (Polarisation und Beobachtungswinkel) die Beiträge von einzelnen Quantentrajektorien zum ATI-Spektrum klar von einander getrennt werden können. Das klassische Modell ist hilfreich bei der Interpretation der Messung, obwohl es streng genommen nur für lineare Polarisation gilt.

# Kapitel 7

# Interferenz von direkten und rückgestreuten Elektronen

Die Möglichkeit, dass Interferenzerscheinungen das Aussehen der ATI-Spektren prägen, legt schon das klassische Modell nahe, indem es für zwei Elektronen mit unterschiedlichen Startzeiten zum gleichen Driftimpuls führt. Damit gibt es zwei prinzipiell nicht unterscheidbare Möglichkeiten, zu einem gegebenen Endzustand zu gelangen. Für direkte Elektronen wurde eine Interferenzstruktur in Abhängigkeit der Elliptizität der Laserpolarisation beobachtet [51]. Allerdings erschweren die experimentellen Bedingungen die Identifikation von Interferenzeffekten in der Messung, da die Lage der Maxima und Minima von der Intensität abhängt. Diese kann im Experiment nicht genau genug bestimmt werden, da zum einen bei jedem Lasersystem Intensitätsschwankungen auftreten, und zum anderen im Laserfokus immer über viele Intensitäten gemittelt wird. Im folgenden wird nun ein Effekt beschrieben, der sich in der Winkelverteilung der ATI-Elektronen manifestiert [52]. Da diese nur wenig von der Intensität beeinflusst wird, ergibt sich ein bemerkenswert klares Interferenzmuster. Der Effekt beruht auf der Interferenz von direkten und rückgestreuten Elektronen.

Im theoretischen Ansatz ergibt sich das Matrixelement als kohärente Summe von Beiträgen der direkten und rückgestreuten Elektronen $M_{\mathbf{p}} = M_{\mathbf{p}}^{(0)} + M_{\mathbf{p}}^{(1)}$. Man kann Gl. 4.22 in die beiden Anteile separieren:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} \quad \propto \quad & \sum_{i=1,2} \left( \det(\partial_t^2 S_{\mathbf{p},i}^{(0)} \right)^{-1/2} \exp(i S_{\mathbf{p},i}^{(0)}(t_{S_i})) \\ & + \sum_{i}^{\infty} \left( \det(\partial_q^2 S_{\mathbf{p},i}^{(1)} \right)^{-1/2} \exp(i S_{\mathbf{p},i}^{(1)}(t_{S_i}, t'_{S_i}, \mathbf{k}_{S_i})) \end{aligned} \tag{7.1}$$

Der erste Summand umfasst die beiden direkten Trajektorien, die durch ihre Startzeit $t_{S_i}$ charakterisiert werden. Der zweite Summand enthält alle Trajektorien, die über eine Rückstreuung zum Zeitpunkt $t'_{S_i}$ in den Endzustand mit gleichem Impuls gelangen. Im Experiment wird das Amplitudenquadrat des Übergangselements zum Impuls **p** gemessen:

$$|M_{\mathbf{p}}|^2 = |M_{\mathbf{p}}^{(0)} + M_{\mathbf{p}}^{(1)}|^2 \tag{7.2}$$

Voraussetzung für eine messbare Interferenz mit hohem Kontrast ist eine vergleichbare Amplitude von $M_{\mathbf{p}}^{(0)}$ und $M_{\mathbf{p}}^{(1)}$. Bei linearer Polarisation ist das Plateau stark ausgeprägt und es bleibt über einen großen Bereich hoher Photoelektronenenergien nahezu konstant. Die Beiträge der direkten Elektronen fallen dagegen stark ab. Deswegen sind nur in einem kleinen Übergangsbereich am Anfang des Plateaus beide Beiträge vergleichbar. Dies ändert sich für elliptische Polarisation, da dann die Rückstreuung unwahrscheinlicher wird und sich die Wahrscheinlichkeiten für direkte und indirekte Elektronen angleichen. Damit sind die Amplituden $M_{\mathbf{p}}^{(0)}$ und $M_{\mathbf{p}}^{(1)}$ über einen relativ großen Energiebereich vergleichbar stark, und ein messbarer Interferenzeffekt ist zu erwarten. Diese Rahmenbedingung legt die Elliptizität der Polarisation fest, und da, wie sich zeigen wird, die Intensitätsabhängigkeit gering ist, verbleibt der Emissionswinkel als der einzige freie Parameter, gegen den das Interferenzmuster untersucht werden kann.

Die Elliptizität führt - besonders bei den rückgestreuten Elektronen - zu niedrigen Zählraten. Ausserdem sind hinreichend viele ATI-Spektren für die verschiedenen Emissionsrichtungen aufzunehmen. Die hohe Laserpulsrepetitionsrate erlaubt es trotzdem, $10^8$ Elektronen für eine Winkelverteilung zu zählen, so dass auch feine Strukturen erkennbar werden. Abb. 7.1 zeigt energieaufgelöste Winkelverteilungen im Dichteplot für lineare Polarisation $\xi = 0$ und zwei elliptischen Polarisationen $\xi = 0.18$ und $\xi = 0.36$. Aufgetragen werden die gemessenen ATI-Spektren für alle Richtungen von -180° bis +180°. Die jeweilige Zählrate der Elektronen ist in Graustufen codiert und für jede Energie auf die Winkelposition 0° normiert. Wie erwartet weisen die Winkelverteilungen Inversionssymmetrie auf.

Für den Fall der linearen Polarisation ist die Polarisationsrichtung eine weitere Symmetrieachse, die für $\xi \neq 0$ gebrochen ist. Die Winkelverteilungen für direkte und rückgestreute Elektronen unterscheiden sich deutlich, da sich letztere auf die Richtung um die große Halbachse der Polarisationsellipse beschränken; der Übergang findet bei ca. 15eV statt. Für elliptische Polarisation wird das Plateau aufgrund der niedrigeren maximalen Feldstärke etwas kürzer. Noch immer erkennt man die Trennung in direkte und indirekte Elektronen. Ausserdem ist die gesamte Winkelverteilung asymmetrisch zur großen

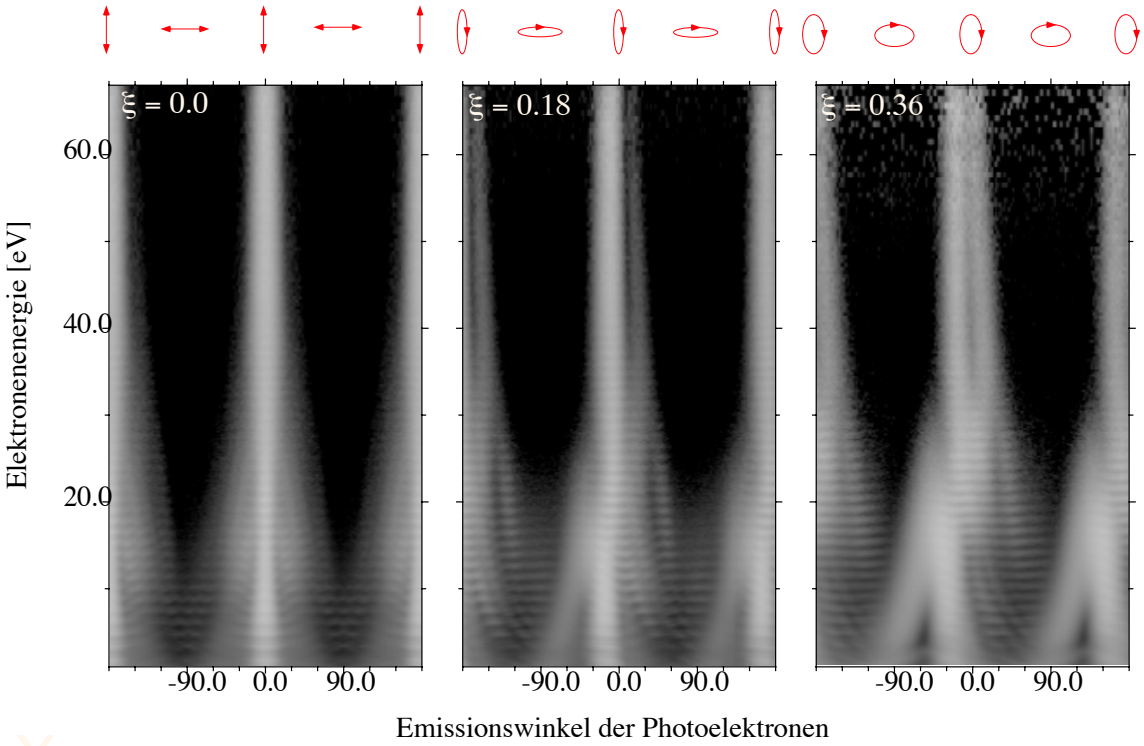


Abbildung 7.1: Dichteplot energieaufgelöster Winkelverteilungen für Xenon bei einer Spitzenintensität von ca. $7.7 \cdot 10^{13}$W/cm$^2$ bei 800nm und einer Elliptizität von $\xi = 0, 0.18$ und 0.36. 0° entspricht einer Elektronenemission in Richtung der großen Halbachse der Polarisationsellipse. Aufgetragen wurde der gesamte Winkelbereich von 360°. Dabei wurde jede Elektronenenergie für sich normiert, so dass die Graustufendarstellung unabhängig von der Elektronenenergie die Zählrate darstellt. Eine helle Schattierung entspricht dabei einer hohen Elektronenzahl.

Halbachse geworden und das Plateau ist zu negativen Winkeln verschoben. All diese Eigenschaften sind mit klassischen Argumenten leicht zu erklären.

Der bemerkenswerteste Effekt ist allerdings ein Aufspalten des Plateaus bei einem bestimmten konstanten Beobachtungswinkel in Bezug zur großen Halbachse der Polarisationsellipse. Diese Aufspaltung wird durch Interferenz der beitragenden Trajektorien verursacht. Zum einen sind diese direkten und zum anderen rückgestreuten Elektronen zuzuordnen.

Einen Ausschnitt über einen Winkelbereich von 180° zeigt Abb. 7.2 im dreidimensionalen Oberflächenplot. Im Plateaubereich, der eine um zwei Größenordnungen niedrigere Zählrate aufweist als der Hauptanteil der direkten Elektronen, kann man deutlich die

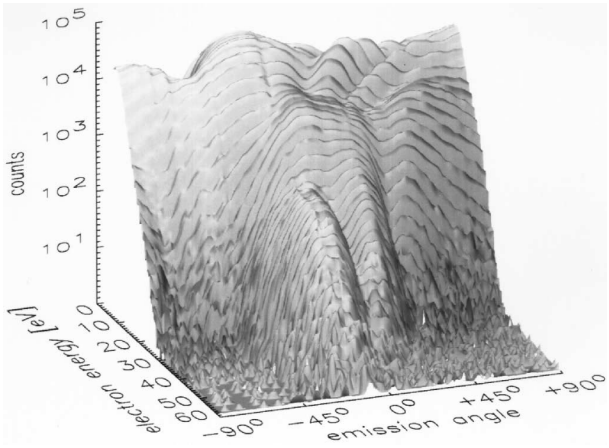


Abbildung 7.2: 3D-Plot der Winkelverteilung für $\xi = 0.36$. Die Elektronenzahl ist logarithmisch aufgetragen und der Winkelbereich auf 180° eingeschränkt. Die ATI-Peak-Struktur erkennt man an den parallel zur Emissionswinkelachse verlaufenden dunklen Linien. Im hochenergetischen Bereich erkennt man deutlich die zwei Plateaus und die Senke zwischen ihnen.

Aufspaltung in zwei Plateaus erkennen. Alle untersuchten Edelgase (Neon, Argon und Xenon) weisen diese markante Struktur des zweiten Plateaus auf. Trotz der vielen Intensitäten im Fokus verwischt sie nicht, d.h. die destruktive Interferenzlinie ist weitgehend intensitätsunabhängig.

Bemerkenswert ist dabei, wie stark die Interferenz ausgeprägt ist, die zu einem Kontrast größer 0.5 führt. Den Kontrast des Interferenzmusters zeigen Schnitte durch Abb. 7.2 parallel zur Emissionswinkelachse. Diese sind in Abb. 7.3 dargestellt und werden mit theoretischen Ergebnissen verglichen. Theorie und Experiment zeigen beide die ausgeprägten Maxima auf beiden Seiten der großen Hauptachse bei 0° und das ausgeprägte Minimum bei einem kleinen positiven Winkel, der kaum mit der Ordnung variiert. Ein quantitativer Vergleich ist dabei aufgrund der Näherungen im theoretischen Modell nicht möglich. Dies liegt an der Tatsache, dass Interferenzstrukturen sehr empfindlich von der Phasenlage der beteiligten Amplituden abhängen. Dazu kommt das Problem, dass die verwendete Keldysh-Rate für die direkten Elektronen eine vergleichsweise schlechte Approximation darstellt.

Ein qualitativer Vergleich mit den Beiträgen der direkten ($M_{\mathbf{p}}^{(0)}$) und indirekten ($M_{\mathbf{p}}^{(1)}$) Elektronen, für die Ordnung s=17 einzeln berechnet und eingezeichnet, zeigt, dass nur die kohärente Summe die Struktur in der Winkelverteilung im Spektrum reproduziert.

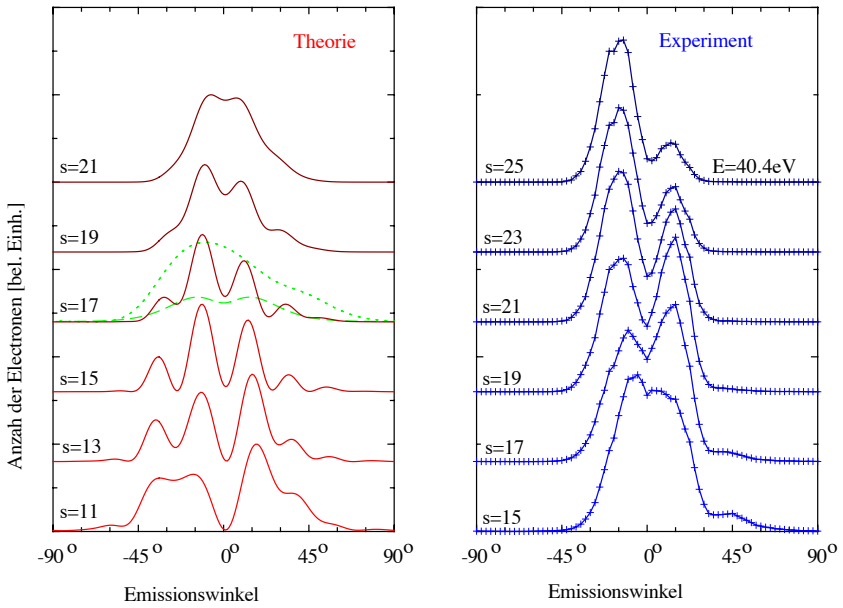


Abbildung 7.3: Berechnete und gemessene Winkelverteilungen für einige ATI-Peaks der Ordnung s im Plateau-Bereich. Die experimentellen Daten entstammen normalisierten Schnitten aus Abbildung 7.2, die in vertikaler Richtung der Übersichtlichkeit wegen separiert wurden. Die theoretischen Parameter der Rechnung liegen mit einer Elliptizität von $\xi = 0.48$ leicht oberhalb und einer Intensität von $5.7 \cdot 10^{13}\mathrm{W/cm}^2$ leicht unterhalb der experimentellen Parameter. Die Bindungsenergie im Zero-Range-Potential wurde zu 0.436a.u. angenommen, das heißt leicht unterhalb des am schwächsten gebundenen Elektrons in Xenon (0.464a.u.). Für s=17 wurden die Beiträge der direkten (gestrichelt) und rückgestreuten (gepunktet) Elektronen getrennt berechnet.

# Kapitel 8

# Interferenz rückgestreuter Elektronen

Die Interferenz rückgestreuter Elektronen hat starke Auswirkung auf das Aussehen von ATI-Spektren im Plateau. Besonders auffällig wird sie, wenn man bei linearer Polarisation die Intensitätsabhängigkeit der ATI-Spektren untersucht. Im folgenden wird zuerst der Einfluß dieser hohen Intensitäten auf den Ionisationsprozess diskutiert. Dann wird die experimentelle Beobachtung des Interferenzeffekts vorgestellt und anschliessend im Rahmen des theoretischen Modells interpretiert.

Ein ATI-Spektrum besteht aus einer Serie von Maxima, die sich bei den kinetischen Energien der Photoelektronen im Photonenabstand $\hbar\omega$ befinden: $E_{\mathrm{kin}} = (N+S)\hbar\omega - I_p$. Dabei ist die Absorption von N Photonen notwendig, um die Bindungsenergie $I_p$ zu überwinden, und S ist die Anzahl der zusätzlich aufgenommenen Photonenenergien im ATI-Prozess. Da die Photoelektronen als freie Elektronen im oszillierenden elektrischen Feld des Lasers eine Zitterbewegung ausführen, müssen sie zusätzlich die ponderomotive Energie $U_p$ aufnehmen. Dies entspricht der Lichtverschiebung der Ionisationsgrenze. Entsprechend muß obige Gleichung erweitert werden:

$$E_{\mathrm{in}} = (N+S)\hbar\omega - I_p - U_p \tag{8.1}$$

Für entsprechend hohe Intensitäten wird die ponderomotive Energie größer als die Photonenergie, und es werden N+1 Photonen erforderlich, um das Atom zu ionisieren. Man spricht vom Schliessen des niedrigsten ATI-Kanals (channel closing). Erhöht man die Intensität weiter, werden aufeinanderfolgend immer höhere ATI-Kanäle bei den entsprechenden Channelclosing-Intensitäten unterdrückt.

Die angeregten Zustände in Edelgasen liegen nahe an der Ionisationsgrenze und erfahren deshalb eine ähnliche Lichtverschiebung. Diese macht es möglich, die angeregten

Zustände bei bestimmten Intensitäten in Resonanz mit einem Mehrphotonenübergang zu bringen. Damit wird die Ionisationsrate erheblich vergrößert. Allerdings kann ein intensives Laserfeld im quasistationären Bild den Bindungspotentialverlauf unter die Energie eines gebundenen Zustands drücken und direkte Feldionisation möglich machen. Für den Grundzustand von Argon tritt dies bei einer Intensität von $2.5 \cdot 10^{14}$W/cm$^2$ ein. Für angeregte Zustände sind viel niedrigere Intensitäten notwendig, für den 4f-Zustand von Argon nur $1 \cdot 10^{10}$W/cm$^2$. Als Konsequenz daraus verbreitern sich bei sehr hohen Intensitäten die angeregten Zustände, überlappen sich und bilden so eine Art Erweiterung des Kontinuums.

Bei der Messung der Intensitätsabhängigkeit von ATI-Spektren wurde ein resonanzartiger Effekt bei überraschend hohen Photoelektronenenergien gesehen [53]. Bei bestimmten Intensitäten wachsen Gruppen von ATI-Maxima im Anfangsbereich des Plateaus überdurchschnittlich stark an. Obwohl das theoretische Modell aus Kap. 4 die angeregten Zustände vernachlässigt, da es das Bindungspotential mit einem δ-Potential annähert, lassen seine Ergebnisse eine qualitative Interpretation der Messungen zu und zeigen, dass die resonanzartigen Strukturen im Spektrum auf Channelclosings zurückgehen. Mit Hilfe der Analyse der beitragenden Quantentrajektorien ist es auch möglich, einzelne Aspekte des Einflusses der Channelclosings auf die ATI-Spektren zu erklären, z.B. dass das resonanzartige Anwachsen auf der Interferenz vieler Trajektorien rückgestreuter Elektronen basiert.

### Experimentelle Ergebnisse

Die hohe Repetitionsrate erlaubt die Messung von vielen ATI-Spektren in kleinen Intensitätsintervallen. Dadurch bietet sich die Möglichkeit, Animationen der Intensitätsabhängigkeit der ATI-Spektren zu erstellen und damit die resonanzartigen Effekte zu studieren. Abbildung 8.1(a) zeigt einen Auszug einer solchen Messung in Argon. Mit zunehmender Intensität wächst die Zählrate im Plateau, und der Cutoff verschiebt sich erwartungsgemäß zu höheren Energien. Die maximale Intensität $I_0$ läßt sich aus der Position des Cutoffs bei $10U_p$ zu ca. $8 \cdot 10^{13}$W/cm$^2$ bestimmen. Bei einer genaueren Betrachtung der Serie von ATI-Spektren erkennt man einen starken Unterschied zwischen den Spektren mit Intensitäten $I \leq 0.8I_0$ im Vergleich zu den Spektren bei höherer Intensität. Man findet zwei Aspekte in der dynamischen Entwicklung der ATI-Plateaus: (i) Innerhalb eines kleinen Intensitätsintervalls wächst eine Gruppe von ATI-Maxima, die im Energiebereich zwischen 15eV und 25eV liegen, überdurchschnittlich. Aufgrund dieses schnellen An-

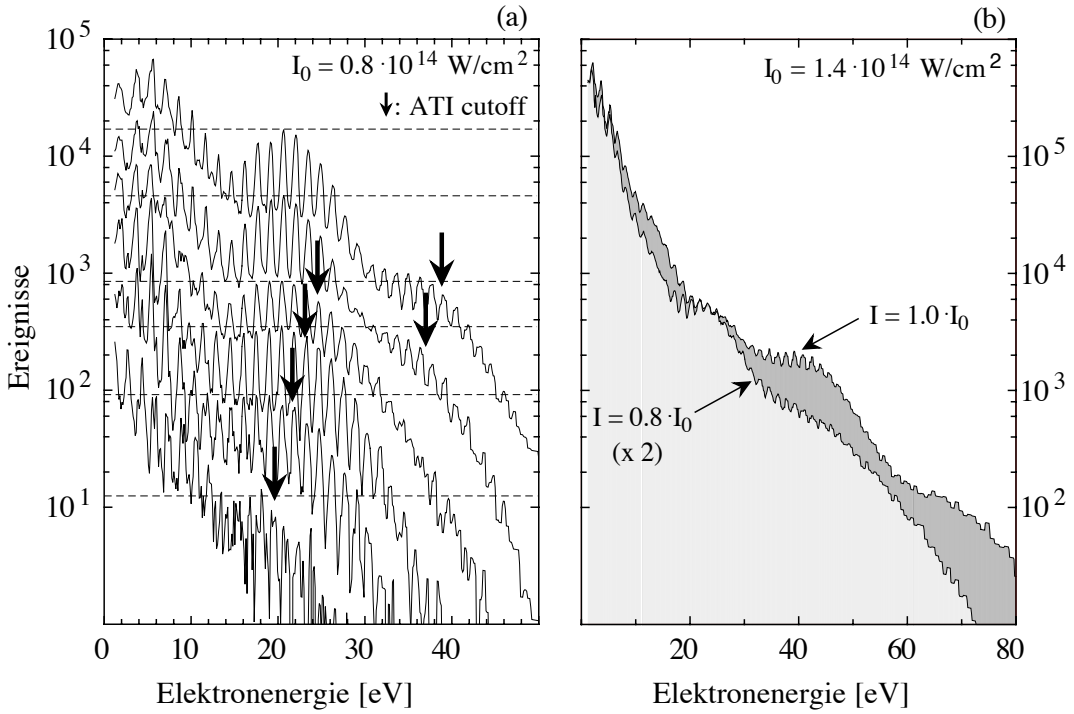


Abbildung 8.1: ATI-Spektren in Argon. Der Beobachtungswinkel liegt in Richtung der linearen Polarisation. (a) Dargestellt sind sechs Spektren von $0.5I_0$ bis $1.0I_0$, mit $I_0 \approx 8 \cdot 10^{13}$W/cm$^2$. Die gestrichelten Linien entsprechen der höchsten Zählrate in jedem Plateau und die Pfeile markieren die ungefähre Lage der Cutoffs. (b) Zwei Spektren bei Intensitäten von $1.12 \cdot 10^{14}$W/cm$^2$ bzw. $1.4 \cdot 10^{14}$W/cm$^2$. Dabei wurde die niedrigere Intensität in der Zählrate verdoppelt, um die Änderung der Form des Spektrums hervorzuheben.

wachsens nähern sich in der Abbildung die gestrichelten Linien, die die Plateaumaxima markieren, aneinander an. (ii) Kurz nach dieser Intensität verlängert sich das Plateau sprunghaft. Die Pfeile, die die jeweilige Cutoff-Energie markieren, deuten dieses an. Bei einer Interpretation muss man bedenken, dass sich ein gemessenes ATI-Spektrum aufgrund des raum-zeitlichen Intensitätsprofils des Fokus aus den Beiträgen aller Intensitäten kleiner der Spitzenintensität $I_0$ zusammensetzt. Zeigt sich eine dramatische Änderung im ATI-Spektrum bei einer bestimmten Intensität $I_c$, wird diese für alle höheren Intensitäten aufgrund der Beiträge von Volumenanteilen mit der Intensität $I_c$ ebenfalls im Spektrum erkennbar bleiben. Das erste Auftreten im Spektrum definiert die für den Effekt verantwortliche Intensität. In diesem Fall liegt sie bei $I_{c,1} \approx 0.85I_0 = 7 \cdot 10^{13}$W/cm$^2$.

Abbildung 8.1(b) gehört zu einer Messung mit höherer Maximalintensität $I_0$, die anhand des Cutoffs und im Vergleich mit den ATI-Spektren in Abb. 8.1(a) zu $1.4 \cdot$

$10^{14}$W/cm$^2$ bestimmt wurde. Die oben beschriebene Erhöhung im Plateau tritt entsprechend bei $0.45\mathrm{I}_0$ ein. Erhöht man die Intensität weiter, behält das ATI-Spektrum seine Form bei, nur die Zählrate nimmt entsprechend zu. Erst bei einer Intensität von ca. $\mathrm{I}_{c,2} \approx 0.85 I_0 = 1.2 \cdot 10^{14}$W/cm$^2$ beginnt wieder eine Gruppe von ATI-Maxima schnell zu wachsen. Die dazugehörigen Elektronenenergien liegen zwischen 25eV und 40eV. Im ATI-Spektrum bildet sich eine zweite Stufe bei 55eV. Zur Verdeutlichung wurde in der Abbildung neben dem Spektrum der Maximalintensität ($\mathrm{I}_{0,\mathrm{max}} > \mathrm{I}_{c,2}$) ein Spektrum mit $\mathrm{I} < \mathrm{I}_{c,2}$ eingetragen, dessen Zählrate mit einem Faktor zwei multipliziert wurde.

Berechnet man die ponderomotiven Energien $U_p$, die zu den beiden ausgezeichneten Intensitäten gehören, stellt man fest, dass sie zu den 12- und 14-Photonen-Channelclosings gehören. Das ebenfalls in das Intensitätsintervall fallende Schliessen des 13-Photonen-Kanals zeigt keine erkennbaren Auswirkungen auf die ATI-Spektren.

### Vergleich mit der Theorie

Im folgenden wird gezeigt, dass die experimentelle Beobachtung mit dem theoretischen Modell aus Kap. 4 reproduziert werden kann. Abbildung 8.2 zeigt jeweils drei berechnete Spektren bei Intensitäten etwas unterhalb, an und etwas oberhalb der 12-, 13- und 14-Photonen-Channelclosings. In Abb. 8.2(a) erkennt man, wie an der Channelclosing-Intensität $\mathrm{I}_c = 6.6 \cdot 10^{13}$W/cm$^2$ eine Gruppe von ATI-Maxima (nur deren Einhüllende wird gezeigt) überdurchschnittlich stark anwächst. Dies entspricht der Messung. Gleichzeitig wird das letzte Drittel im Plateau unterdrückt, und erst nachdem $\mathrm{I}_c$ passiert wurde, verlagert sich der Cutoff zu höheren Energien. Auch dies wurde experimentell festgestellt. Vergleicht man mit dem 13-Photonen-Channelclosing, stellt man kaum einen Einfluss auf die Form des Spektrums fest. Erst für das 14-Photonen-Channelclosing in Abb. 8.2c ergibt sich die gleiche dynamische Änderung im Spektrum, wieder in Übereinstimmung mit dem Experiment. Die Gruppe von ATI-Maxima vor dem Cutoff ist für Intensitäten unterhalb $\mathrm{I}_c$ unterdrückt. Dies führt zur Verlängerung des Plateaus, nachdem die Channelclosing-Intensität erreicht wurde. Im Spektrum in Abb. 8.2c ist keine Doppelstufe zu erkennen. Dies beruht darauf, dass die Rechnung nur für eine Intensität durchgeführt wird, wogegen im Experiment viele Intensitäten vorliegen.

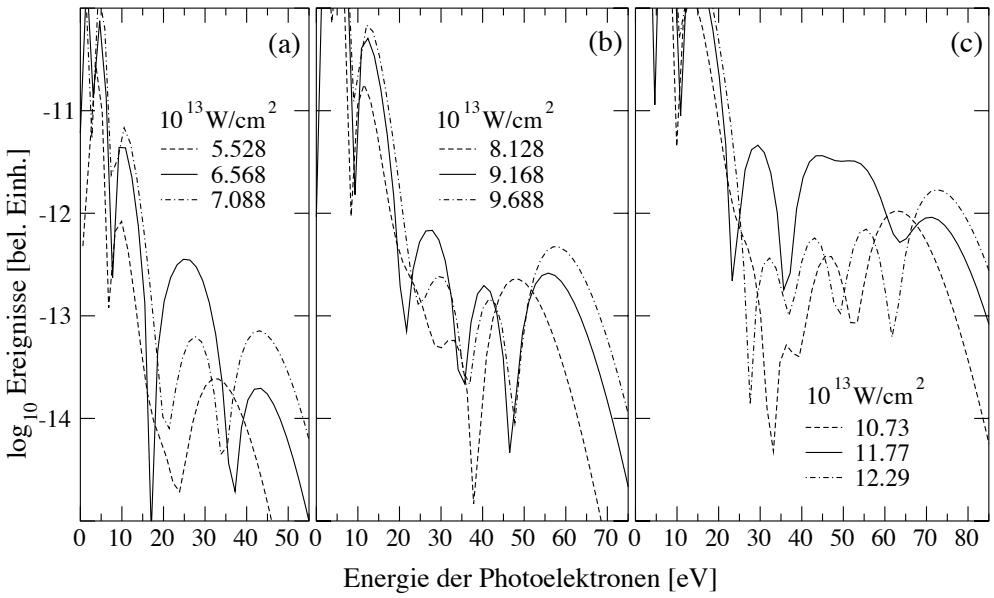


Abbildung 8.2: Einhüllende der berechneten ATI-Spektren bei Intensitäten im Bereich der Channelclosings für 12 (a), 13 (b) und 14 (c) Photonen. Die Intensität am Channelclosing ist jeweils durchgezogen. Dabei wurde das um $E_c = -1.07eV$ reduzierte Bindungspotential für Argon im Modellatom verwendet.

**Trajektorien-Analyse**

Im theoretischen Modell kann man nun eine Analyse der ATI-Spektren mit Hilfe der rückstreuenden Trajektorien durchführen. Dazu berechnet man das ATI-Spektrum, das sich ergibt, wenn man allein das Paar der kürzesten Trajektorien zur Berechnung heranzieht. Anschließend kann man die Beiträge von den nächstlängeren Trajektorien-Paaren hinzunehmen. Diese angenäherten Spektren können jetzt mit der 'exakten' numerischen Lösung verglichen werden. In Abb. 8.3 wurde dies jeweils für eine Intensität knapp unterhalb des bzw. am 12-Photonen-Channelclosing durchgeführt. Bei der Intensität I$= 6.05 \cdot 10^{13}$W/cm$^2$ reichen schon die ersten drei Trajektorien-Paare, um eine sehr gute Annäherung der exakten numerischen Lösung zu erreichen. Dies verhält sich anders im Fall der Intensität am Channelclosing I$_c = 6.6 \cdot 10^{13}$W/cm$^2$. In Abb. 8.3b erkennt man, dass viele Trajektorien notwendig sind, um eine gute Approximation zu erzielen. Vergleicht man die aus der Rechnung gewonnenen Beiträge der einzelnen Trajektorien-Paare, so unterscheiden sich diese für die beiden Intensitäten kaum. Ein Unterschied ergibt sich erst in der kohärenten Summe aller Trajektorien. Unterhalb $I_c$ interferieren die langen Trajektorien rein zufällig und ergeben keinen Beitrag. Am Channelclosing interferieren 'alle' Trajektorien konstruktiv und sind damit zusammen für die Form des ATI-Plateaus wich-

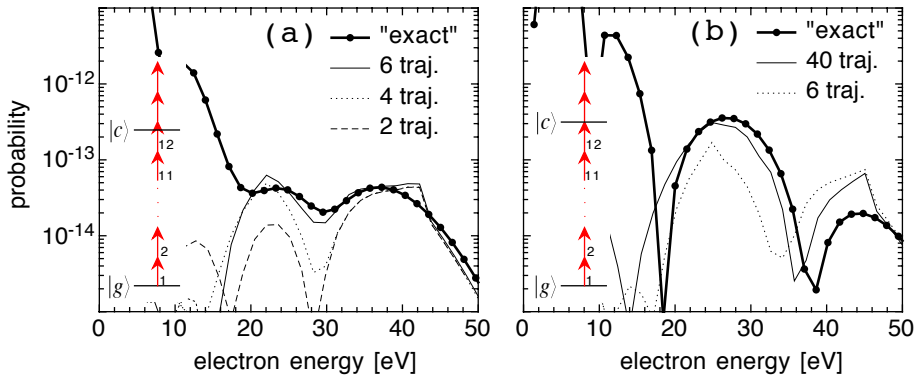


Abbildung 8.3: Approximation der 'exakten' numerischen Lösung durch die Beiträge unterschiedlich vieler Trajektorien. In (a) liegt die Intensität etwas unter der Channelclosing-Intensität für 12 Photonen. Schon drei Paare von Trajektorien ergeben eine gute Annäherung. Bei der Channelclosing-Intensität in (b) sind erheblich mehr Trajektorien zur Approximation notwendig. Da nur rückgestreute Trajektorien betrachtet werden, ist eine Approximation niedriger Photoelektronenenergie (<20eV) nicht möglich.

tig. Warum diese konstruktive Interferenz gerade bei den Channelclosing-Intensitäten eintritt, ist noch ungeklärt. Allerdings kann man mit ihr erklären, warum gerade im Plateau die niederenergetischen ATI-Maxima verstärkt werden. Wie schon in Kap. 6 angesprochen, liegen die Cutoff-Energien der Trajektorien höherer Rückkehrordnungen bei $8U_p$. Sind nun all diese Trajektorien von Bedeutung, können sie nur Photoelektronen mit Energien bis maximal $8U_p$ produzieren. Das führt zum beobachteten resonanzartigen Ansteigen des niederenergetischen Bereichs im Plateau.

Für den diskutierten Effekt wurde in der Literatur eine abweichende Erklärung gegeben: Sie beruht auf der Tatsache, dass die angeregten Zustände des Atoms - ähnlich wie die Ionisationsschwelle - durch die Wechselwirkung mit dem Laser verschoben werden (AC-Stark-Shift, Lichtverschiebung). Wenn sie dabei in Resonanz mit einem virtuellen Zustand geraten, steigt die Ionisationsrate stark an (resonance enhanced multiphoton ionization, REMPI). Lange bekannt ist, dass dieser Effekt sich in den ATI-Spektren als 'Feinstruktur" zwischen den ATI-Maxima bemerkbar macht (Freeman-Resonanzen [4]). Numerische Simulationen führten Muller [63] zu der Schlussfolgerung, dass auch das oben beschriebene resonanzartige Verhalten des ATI-Plateaus auf Resonanz mit gebundenen Zuständen zurückgeht. Zumindest unter den hier vorliegenden experimentellen Bedingungen können gegen diese Interpretation mehrere Einwände geltend gemacht werden:

- Die Laserpulse sind so kurz und intensiv, dass von gebundenen Zuständen kaum

noch gesprochen werden kann.

- Die Keldysh-Theorie, die aufgrund der Approximation des atomaren Potentials mit dem δ-Potential keine gebundenen Zustände berücksichtigt, reproduziert die experimentellen Resultate und liefert eine einfache Deutung.
- Im Gegensatz zu Mullers Ansatz kann die hier diskutierte Theorie auch Details wie die Tatsache, dass die resonanzartige Verstärkung auf den niederenergetischen Teil des Plateaus beschränkt ist, erklären.

# Kapitel 9

# Above-threshold Ionisation mit 6fs-Pulsen

In Kap. 5 dieser Arbeit wurde ein Vergleich der drei Effekte HHG, ATI und NSDI durchgeführt und ihre gemeinsame Abhängigkeit von der Rückkehr des Elektrons zum Kern bestätigt. In den Kapiteln 6 bis 8 wurden Messungen und deren Analyse mit Hilfe von Quantentrajektorien vorgestellt. Auch hier, und vor allem im letzten Beispiel für Interferenz, lag der Schwerpunkt auf Trajektorien, die zum Ionenrumpf zurückkehren und an ihm streuen. Die Messungen wurden mit 50fs-Pulsen durchgeführt, die ein Lasersystem mit 100kHz liefern konnte. Die vorgestellten experimentellen Aufbauten sind so ausgelegt, dass sie den Vorteil der hohen Repetitionsrate in eine hohe Empfindlichkeit und in hochauflösende Studien (Energie und Polarisation) umsetzen konnten.

Die Entwicklung von neuen Lasern mit sub-10fs Laserpulsdauer und mit Pulsenergien von einigen hundert Mikrojoule wird nun das Verständnis der Physik in starken Feldern prüfen. Dabei spielt zum einen der Aspekt hoher Rückkehrzeiten eine entscheidende Rolle, zum anderen die 'absolute' Phase, d.h. die Phase zwischen Pulseinhüllender und Trägerfrequenz (siehe Abb. 9.2). Bei Pulslängen von zwei optischen Zyklen hat das Elektron nur noch eingeschränkt Zeit, mit dem Kern wechselzuwirken, und alle Beiträge von längeren Trajektorien mit großen Rückkehrzeiten entfallen. Das elektrische Feld wird direkt von der absoluten Phase verändert und damit auch die Trajektorien der Elektronen.

Im folgenden wird zuerst das klassische Modell auf sehr kurze Pulse angewandt. Dabei liegt der Schwerpunkt auf Trajektorien, die zum Ionenrumpf zurückkehren. Anschliessend werden erste Messungen von ATI mit sub-10fs-Laserpulsen vorgestellt. Die

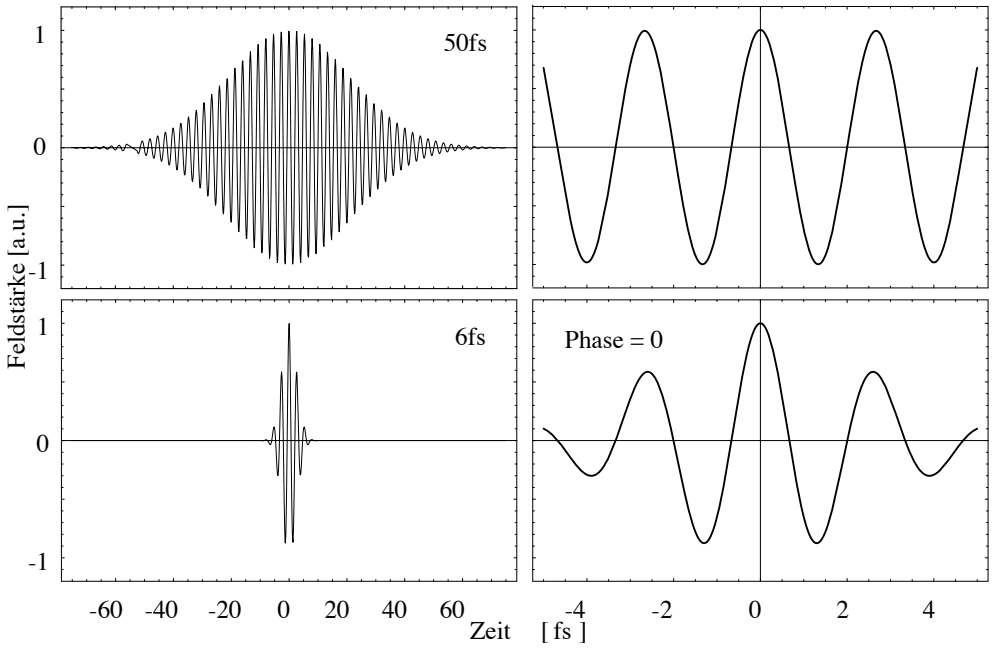


Abbildung 9.1: Vergleich eines 50fs-Pulses mit einem 6fs-Puls bei 800nm Wellenlänge.

Arbeit schließt mit der ersten Messung eines Effekts, der auf die absolute Phase zurückgeht.

## 9.1 Das klassische Modell bei einer Pulslänge von 6fs

Das Mehrstufenmodell geht von einem oszillierenden elektrischen Feld mit einer konstanten maximalen Amplitude aus. Für sehr kurze Pulse wird das elektrische Feld in Gl. 3.1 durch einen Gauß'förmigen Laserpuls ersetzt ($E_0$: maximale Feldamplitude):

$$E(t) = E_0 \cos(\omega t + \varphi) \exp\left(\frac{4 \ln 2\, t^2}{\tau^2}\right) \tag{9.1}$$

Die Phase $\varphi$ wird von Bedeutung, sobald die Pulslänge $\tau$ vergleichbar mit der Periode $T = 2\pi/\omega$ des Laserfeldes wird. Abb. 9.1 vergleicht das elektrische Feld eines 50fs-Pulses mit dem eines 6fs-Pulses. Am Feldmaximum ist die Amplitude des 50fs-Pulses nahezu konstant. Damit ist das in Kap. 3 diskutierte klassische Modell anwendbar, und die absolute Phase ist noch nicht zu berücksichtigen. Bei einer Pulsdauer von 6fs ändert sich die Amplitude von Halbperiode zu Halbperiode und hängt von der relativen Phase zwischen der Trägerwelle des elektrischen Feldes und der einhüllenden Pulsform ab.

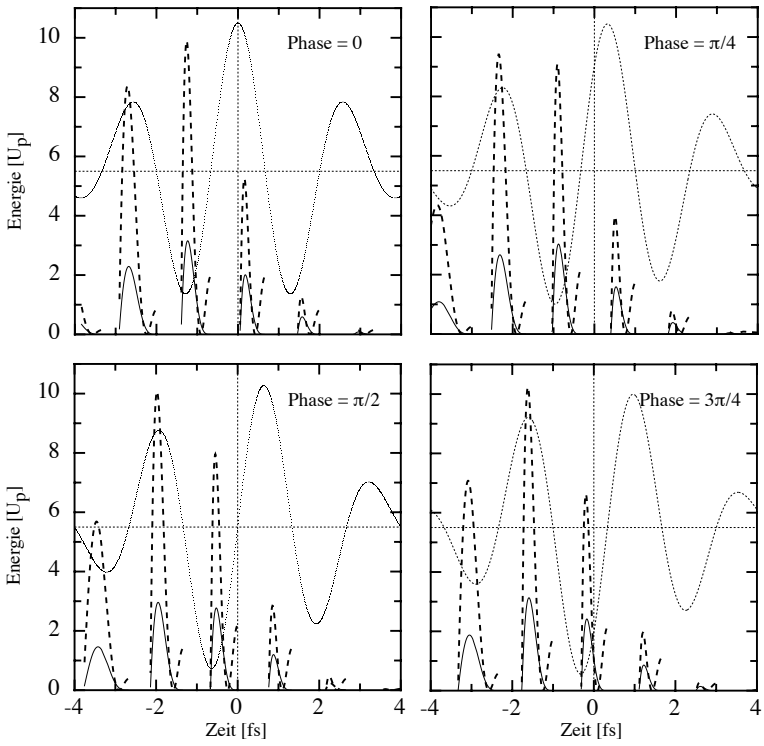


Abbildung 9.2: Rückkehrenergie der Elektronen (durchgezogene Linie) und Energie der rückgestreuten Elektronen (gestrichelte Linie) in $U_p$ in Abhängigkeit von der Startzeit $t_0$ für verschiedene Phasen $\varphi = 0$, $\pi/4$, $\pi/2$, $3\pi/4$ eines 6fs-Pulses (gepunktet).

Man muss nun die Rückkehrenergie der Elektronen (HHG) und die Energie der Photoelektronen nach der Streuung (ATI) in Abhängigkeit von der Phase berechnen. Abb. 9.2 zeigt dies für $\varphi = 0$, $\pi/4$, $\pi/2$ und $3\pi/4$. Die erreichbaren Energien ändern sich mit der Amplitude des Feldes. Dabei sind die Feldstärken zur Start- und Rückkehrzeit ausschlaggebend. Das Zeitintervall, während dessen ein Elektron starten kann und zum Ionenrumpf zurückkommt, ändern sich über den Puls. In der ansteigenden Flanke werden auch Elektronen, die vor dem Maximum des Feldes starten, vom stärker werdenden Feld zurückgetrieben. In der abfallenden Seite wird das Startzeitfenster entsprechend kleiner. Es fällt auf, dass die vor dem Maximum des Pulses ins Kontinuum gelangenden Elektronen die höchsten Energien gewinnen können. Der klassische ATI-Cutoff kann dabei überschritten werden. Im Beispiel $\varphi = 3\pi/4$ kann das Elektron bis zu $10.23U_p$ Driftenergie gewinnen. Für lineare Polarisation driften die Elektronen aus aufeinanderfolgenden Halbzyklen in entgegengesetzte Richtungen. Für eine absolute Phase von $\varphi = 3\pi/4$ ergeben sich für die beiden Richtungen Plateaus von $7U_p$ bzw. $10U_p$. Falls es gelingt, ATI mit phasenstabilisierten 5fs-Pulsen durchzuführen, ermöglicht obige Tatsache die kohärente

Steuerung der Emissionsrichtung der Photoelektronen.

Die Rückkehrenergie der HHG-Elektronen bleibt dagegen durch den klassischen Fall begrenzt. Die Harmonischen werden im Zeitabstand $T/2$ moduliert emittiert. Die zeitliche Struktur der emittierten Harmonischenpulse hängt von der Phase ab und ändert sich über das Plateau. Im Cutoff-Bereich von $1.5U_p$ bis $3U_p$ stehen für $\varphi = \pi/4$ zwei Halbzyklen zu Verfügung. Für $\varphi = 3\pi/4$ beruht das Plateau im hochenergetischen Drittel nur auf einem Halbzyklus des Feldes. Ein möglicher Weg, daraus die Phase zu bestimmen, wurde von de Bohan et al. vorgeschlagen [64].

Bei diesen Überlegungen muss immer berücksichtigt werden, dass die Ionisationsrate zum Zeitpunkt $t_0$ stark nichtlinear vom elektrischen Feld abhängt. Feldstärken von einem Drittel des Maximums tragen nur noch wenig zur Ionisation bei. Somit werden die möglichen Startzeiten weiter eingeschränkt. Diese kurze Behandlung des klassischen Modells bei 6fs-Pulsen läßt schon den vielfältigen Einfluss erahnen, den die Kontrolle der absoluten Phase auf die Physik in intensiven kurzen Laserfeldern haben wird.

## 9.2 Above-threshold Ionisation bei Pulsdauern von wenigen optischen Zyklen

Abbildung 9.3 zeigt eine erste Untersuchung von Photoelektronen, die durch die Wechselwirkung von Argon- und Xenon-Atomen mit nur 6fs langen Laserpulsen ionisiert wurden. Ein Vergleich mit den Spektren bei längerer Pulsdauer (20fs und 50fs) zeigt schon, dass der im vorigen Kap. 8 ausführlich diskutierte Einfluss der Channel Closings nicht mehr bzw. in anderer Form auftritt. Die Überhöhung der ATI-Peaks um 20eV ist nicht mehr vorhanden, dafür scheint der Abfall der direkten Elektronen langsamer zu sein. Das Plateau selbst beginnt später, in Xenon bei 20eV statt bei 16eV für 50fs, und es weist eine entsprechend niedrigere Zählrate auf.

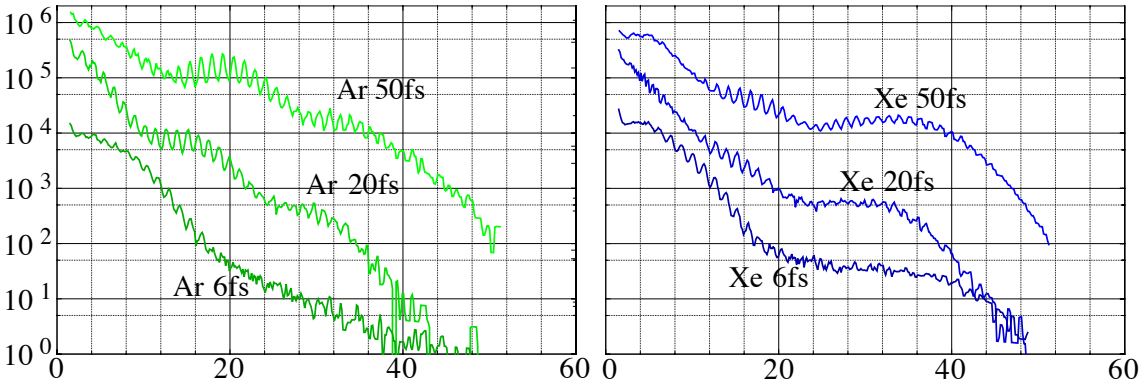


Abbildung 9.3: ATI-Spektren gemessen in Argon und in Xenon bei drei Pulslängen: 50fs, 20fs und 6fs. Die Intensität liegt jeweils bei ca. $7 \cdot 10^{13}$W/cm$^2$. Der Übersichtlichkeit wegen sind die Spektren vertikal verschoben worden, so dass die absoluten Zählraten nicht vergleichbar sind. Die Messung der ersten ATI-Spektren mit 6fs-Laserpulsen entstammen einer Kollaboration mit der Politechnico in Mailand, die über eines der drei 5fs-Lasersysteme weltweit verfügt.

## 9.3 Die absolute Phase und Above-threshold Ionisation

Ein wichtiger Aspekt der Laserpulse von wenigen optischen Zyklen ist der Einfluss der absoluten Phase, da diese das elektrische Feld unter der einhüllenden Pulsform und damit die Wechselwirkung bestimmt.

Die Beherrschung der absoluten Phase zusammen mit der Kontrolle des Phasenverlaufs des elektrischen Feldes bei extrem kurzen und damit spektral breiten Femtosekunden-Pulsen [65] wird ein entscheidender Schritt hin zur Kontrolle von atom-, molekül- und plasma-physikalischen Vorgängen mit Hilfe von starken Laserfeldern sein.

ATI reagiert besonders empfindlich auf die absolute Phase des einfallenden Laserpulses. In Kap. 9.1 wurde schon auf die Abhängigkeit der Energie rückgestreuter Photoelektronen von der absoluten Phase eingegangen. Betrachtet man die Winkelverteilung der (direkten) Photoelektronen von zirkular polarisierten 5fs-Pulsen, so ist aufgrund der starken Modulation des elektrischen Feldes die Rotationssymmetrie in der Winkelverteilung gebrochen [67]. Mit dem ATI-Spektrometer in seiner "Stereo-Konfiguration" - in entgegengesetzten Richtungen werden simultan Elektronen gemessen - ist es nun erstmals gelungen, einen Effekt zu messen, der auf die absolute Phase des Lasers zurückgeht.

Eine Messung mit den kürzesten verfügbaren Pulsen zeigt das Korrelationsdiagramm in Abb. 9.4a [69]. Dabei werden die Laserschüsse entsprechend den gezählten Elektronen, die in beiden Richtungen gemessen wurden, Schuss für Schuss eingetragen. Die registrierten 200.000 Schüsse weisen im Mittel fünf Elektronen in jeder Richtung auf. Auf die zentralen Punkte im Korrelationsdiagramm fallen dabei einige Tausend Schuss. Das sich ergebende Bild ist für hohe Elektronenzahlen in der gegendiagonalen Richtung abgeflacht. Dies deutet an, dass, falls in einem Arm viele Elektronen detektiert wurden, im anderen wenige gemessen wurden und umgekehrt: Die Ereignisse in den beiden Richtungen sind antikorreliert.

Die Antikorrelation in den Ereignissen geht auf die Asymmetrie in der Winkelverteilung der Photoelektronen zurück und wurde mit Hilfe einer statistischen Korrelationsanalyse bestätigt. Dazu berechnet man aus den Ereignissen im Streudiagramm das sogenannte Kendall-Tau [66]. Dies ist ein nicht-parametrischer Rangkorrelationskoeffizient, der die Korrelation zweier Ereignisse charakterisiert. Ein positives Kendall-Tau bedeutet Korrelation, ein negatives Kendall-Tau Antikorrelation. Man misst seinen Wert in Einheiten der Varianz der unkorrelierten Null-Hypothese. Dieser Korrelationskoeffizient bezieht sich allein auf die relative Ordnung der Ereignisse, so dass ein Informationsverlust stattfindet. Das Kendall-Tau trifft damit eine sehr konservative Aussage über die Korrelation zweier Größen. Das Kendall-Tau für die Messung in Abb. 9.4a ist über die gesamte Messung kleiner Null und ist sogar zeitweise kleiner -2 (in Einheiten der unkorrelierten Varianz).

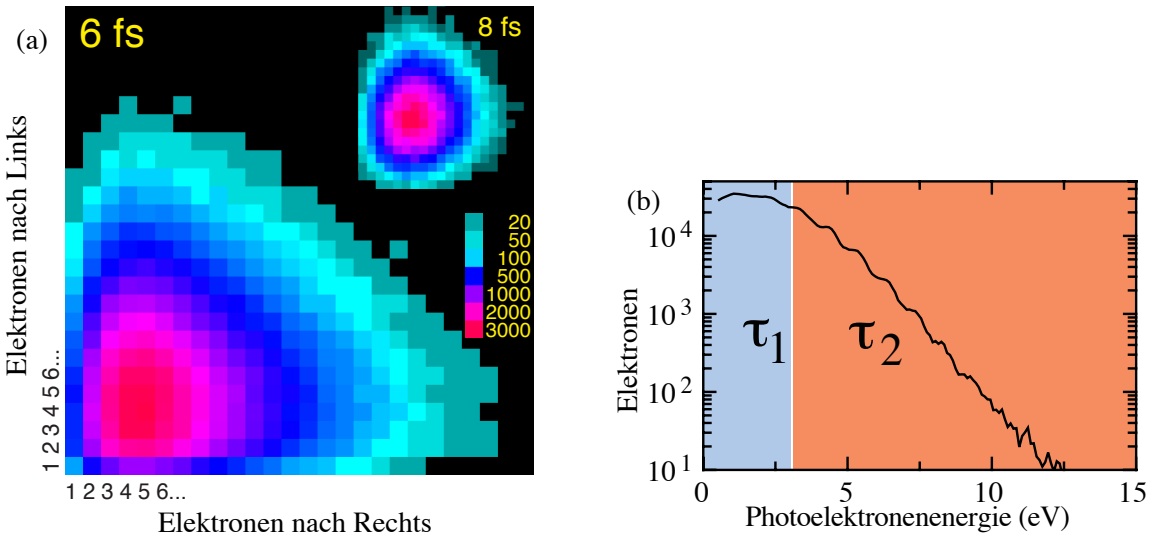


Abbildung 9.4: (a)Streudiagramm der in entgegengesetzter Richtung detektierten Elektronen. Die Schusszahl pro Punkt im Streudiagramm entspricht der angegebenen Farbskala. Das Maximum der Verteilung liegt bei circa fünf Elektronen, die pro Schuss gemessen wurden. Zum Vergleich wird auch eine Messung bei einer Pulslänge von ca. 8fs gezeigt. (b) ATI-Spektrum bei zirkularer Polarisation und 6fs-Pulslänge aus der Messung in (a).

Der Hauptgegenspieler in der Beobachtung der Antikorrelation ist neben der Pulslänge die natürliche Schwankung der Pulsenergie von Schuss zu Schuss, die zu einer ausgeprägten Korrelation führt. Führt man eine Messung mit etwas längeren Pulsen durch, dominiert die Korrelation der Schwankung sofort die Messung, und es ergibt sich ein positives, schnell anwachsendes Kendall-Tau.

Die Messung der Antikorrelation ermöglicht die Studie des Einflusses der Phase auf ATI. So können Korrelationsanalysen, z.B. in Energie-Fenstern, die Auswirkung auf verschiedene Bereiche im Spektrum untersuchen (Abbildung 9.4b) und anschliessend ein Vergleich mit noch zu erstellenden theoretischen Modellen durchgeführt werden. Neben dieser Studie neuer physikalischer Aspekte ist die Ausprägung der Antikorrelation selbst ein diagnostisches Werkzeug z.B. zur Optimierung der Pulsdauer. Dies ist gerade bei Pulsdauern von einigen Femtosekunden sehr hilfreich.

## 9.4 Ausblick

Nachdem nun erstmals Auswirkungen der absoluten Phase im Experiment gemessen wurden, ergeben sich folgende weiterführende Ziele: Zum einen die Messung der absoluten Phase und darauf aufbauend zum anderen die kontrollierte Erzeugung von verstärkten Femtosekundenpulsen mit Pulsdauern von wenigen optischen Zyklen bei bekannter und stabilisierter absoluter Phase. Beide Projekte werden zur Zeit in Zusammenarbeit mit der TU Wien (Prof. Krausz) vorbereitet.

Ein vielversprechender Ansatz, um die absolute Phase zu bestimmen, geht von einem phasenstabilisierten 4.5fs-Oszillator aus, der eine vergleichsweise kleine Repetitionsrate von 24MHz aufweist. Letzteres führt zu einer relativ hohen ausgekoppelten Pulsenergie von ca. 4nJ. Phasenstabilisiert bedeutet in diesem Fall, dass die Änderung der absoluten Phase von Puls zu Puls stabilisiert wurde [68]. Allerdings ist der Wert der absoluten Phase des Pulses nicht bekannt. Der bekannte Puls-zu-Puls-Phasenschlupf vereinfacht die Messung der absoluten Phase mit einem Stereo-ATI-Experiment. Dieses Experiment hat im Vergleich zum oben beschriebenen den Nachteil der geringeren Pulsenergie. Die damit verbundene geringere Elektronenzählrate wird teilweise durch die hohe Repetitionsrate ausgeglichen. Um die Nachweiseffizienz insgesamt zu erhöhen, wird ein neues Stereo-ATI-Experiment aufgebaut, das speziell für die Bedingungen optimiert ist.

Vorausgesetzt, der obige Ansatz ermöglicht die Bestimmung der absoluten Phase, steht als nächster Schritt eine Verstärkung zu größeren Pulsenergien an. Dabei darf die Phaseninformation und natürlich die Pulsdauer nicht verloren gehen. Intensive phasenstabilisierte ultrakurze Pulse werden zu einer Vielzahl von Untersuchungen und Anwendungen im Bereich von ATI, HHG sowie der kohärenten Steuerung atomarer und molekularer Prozesse einschließlich chemischer Reaktionen führen.

# Literaturverzeichnis


[1] G. S. Voronov, N. B. Delone, Engl. trans. Sov. Phys. JETP **23**, 54 (1966).

[2] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, N. Rahman, Phys. Rev. Lett. **42**, 1127 (1979).

[3] P. Agostini, J. Kupersztych, L. A. Lompre, G. Petite, F. Yergeau, Phys. Rev. A. **36**, 4111 (1987).

[4] R. R. Freeman, P. H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, M. E. Geusic, Phys. Rev. Lett. **59**, 1092 (1987).

[5] G. G. Paulus, W. Nicklich, Xu Huale, P. Lambropoulos, H. Walther, Phys. Rev. Lett. **72**, 2851 (1994).

[6] A. L'Huillier, L. A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, Phys. Rev. Lett. **48**, 1814 (1982).

[7] A. L'Huillier, L. A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, Phys. Rev. A. **27**, 2503 (1983).

[8] A. L'Huillier, L. A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **16**, 1363 (1983).

[9] P. Lambropoulos, Phys. Rev. Lett. **55**, 2141 (1985).

[10] B. Walker, E. Mevel, B. Yang, P. Preger, P. Agostini, L. F. DiMauro, Phys. Rev. A. **48**, R894 (1993).

[11] B. Walker, B. Sheehy, L. F. DiMauro, P. Agostini, K. J. Schafer, K. C. Kulander, Phys. Rev. Lett. **73**, 1227 (1994).

[12] D. N. Fittinghoff, P. R. Bolton, B. Chang, K. C. Kulander, Phys. Rev. Lett. **69**, 2642 (1992).

[13] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).

[14] A. Becker, F. H. M. Faisal, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **29**, L197 (1996).

[15] U. Eichmann, M. Dörr, H. Maeda, W. Becker, W. Sandner, Phys. Rev. Lett. **84**, 3550 (2000).

[16] R. Moshammer, B. Feuerstein, W. Schmitt, A. Dorn, C. D. Schröter, J. Ullrich, H. Rottke, C. Trump, M. Wittmann, G. Korn, K. Hoffmann, W. Sandner, Phys. Rev. Lett. **84**, 447 (2000).

[17] T. Weber, M. Weckenbrock, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, F. Afaneh, G. Urbasch, M. Vollmer, R. Dörner, Phys. Rev. Lett. **84**, 443 (2000).

[18] T. Weber, H. Giessen, M. Weckenbrock, G. Urbasch, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, M. Vollmer, R. Dörner, Nature **405**, 658 (2000).

[19] A. McPherson, G. Gibson, H. Hara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, C. K. Rhodes, J. Opt. Soc. Am. B **4**, 595 (1987).

[20] M. Ferray, A. l'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, J. Phys. B **21**, L31 (1988).

[21] M. Schnürer, C. Spielmann, P. Wobrauschek, C. Streli, N. H. Burnett, C. Kan, K. Ferencz, R. Koppitsch, Z. Cheng, T. Brabec, F. Krausz, Phys. Rev. Lett. **80**, 3236 (1998).

[22] C. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnürer, C. Kan, M. Lenzner, P. Wobrauschek, F. Krausz, Science **278**, 661 (1997).

[23] B. Walker, B. Sheehy, K. C. Kulander, L. F. DiMauro, Phys. Rev. Lett. **77**, 5031 (1996).

[24] G. G. Paulus, Diss., LMU München (1996).

[25] G. F. Zacher, Diss., LMU München (1998).

[26] B. Procter, F. Wise, Opt. Lett. **17**, 1295 (1992).

[27] C. Fiorini, C. Sauteret, C. Rouyer, N. Blanchot, S. Seznec, A. Migus, IEEE J. Quantum Electronics **30**, 1662 (1994).

[28] P. Salieres, T. Ditmire, K. S. Budil, M. D. Perry, A. L'Huillier, J. Phys. B **27**, L217 (1994).

[29] H. B. v. Linden v.d. Heuvell, H. G. Muller, *Multiphoton Processes, Studies in Modern Optics* No. 8, 25, Cambridge (1988).

[30] P. B. Corkum, N. H. Burnett, F. Brunel, Phys. Rev. Lett. **62**, 1259 (1989).

[31] J. L. Krause, K. J. Schafer, K. C. Kulander, Phys. Rev. Lett. **68**, 3535 (1992).

[32] G. G. Paulus, W. Becker, W. Nicklich, H. Walther, J. Phys. B **27**, L703 (1994).

[33] G. G. Paulus, W. Becker, H. Walther, Phys. Rev. A **52**, 4043 (1995).

[34] L. V. Keldysh, Engl. trans. Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1964).

[35] C. J. Joachain, M. Dörr, N. J. Kylstra, Adv. At., Mol., Opt. Phys. **42**, 225 (2000).

[36] H. G. Muller, Laser Phys. **9**, 138 (1999).

[37] R. P. Feynman, A. R. Hibbs,Quantum Mechanics and Path Integrals, New York, McGraw-Hill, (1965).

[38] S. J. McNaught, J. P. Knauer, D. D. Meyerhofer, Phys. Rev. Lett. **78**, 626 (1972).

[39] A. Lohr, Diss., TU München (1996).

[40] W. Becker, M. Kleber, A. Lohr, G. G. Paulus, H. Walther, F. Zacher, Laser Physics **8**, 1 (1998)

[41] L. D. Landau, E. M. Lifschitz,Quantum Mechanics: Non-Relativistic Theory, 2nd ed., Oxford, Pergamon Press, (1965)

[42] A. M. Perelomov, V. S. Popov, M. V. Terent'ev, Engl. trans. Sov. Phys. JETP **23**, 943 (1966).

[43] M. V. Ammosov, N. B. Delone, V. P. Krainov, Engl. trans. Sov. Phys. JETP **64**, 1191 (1986).

[44] B. Gottlieb, M. Kleber, Ann. Physik **1**, 369 (1992).

[45] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, P. B. Corkum, Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994).

[46] F. H. M. Faisal, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **6**, L89 (1973).

[47] H. R. Reiss, Phys. Rev. A **22**, 1786 (1980).

[48] A. Lohr, M. Kleber, R. Kopold, W. Becker, Phys. Rev. A. **55**, R4003 (1997).

[49] R. Kopold, D. B. Milosevic, W. Becker, Phys. Rev. Lett. **84**, 3831 (2000).

[50] P. Salieres, B. Carre, L. LeDeroff, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Kopold, W. Becker, D. B. Milosevic, A. Sanpera, M. Lewenstein, Science **278**, 661 (2001).

[51] G. G. Paulus, F. Zacher, H. Walther, A. Lohr, W. Becker, M. Kleber, Phys. Rev. Lett. **80**, 484 (1998).

[52] G. G. Paulus, F. Grasbon, A. Dreischuh, H. Walther, R. Kopold, W. Becker, Phys. Rev. Lett. **84**, 3791 (2000).

[53] G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther, R. Kopold, W. Becker, Phys. Rev. A. **64**, R21401 (2001).

[54] P. Antoine, A. L'Huillier, M. Lewenstein, P. Salieres, B. Carre, Phys. Rev. A. **53**, 1725 (1996).

[55] A. L'Huillier, Ph. Balcou, S. Candel, K. J. Schafer, K. C. Kulander, Phys. Rev. A. **46**, 2778 (1992).

[56] A. L'Huillier, M. Lewenstein, P. Salieres, Ph. Balcou, M. Y. Ivanov, M. Yu, J. Larsson, C. G. Wahlström, Phys. Rev. A. **48**, R3433 (1993).

[57] M. Lewenstein, P. Salieres, A. L'Huillier, Phys. Rev. A **52**, 4747 (1995).

[58] P. Salieres, A. L'Huillier, P. Antoine, M. Lewenstein, Adv. At., Mol., Opt. Phys. **41**, 83 (1999).

[59] P. Salieres, A. L'Huillier, M. Lewenstein, Phys. Rev. L **74**, 3776 (1995).

[60] R. Kopold, Diss., TU München (2000).

[61] K. S. Budil, P. Salieres, A. L'Huillier, T. Ditmire, M. D. Perry, Phys. Rev. A. **48**, R3437 (1993).

[62] P. Dietrich, N. H. Burnett, M. Ivanov, P. B. Corkum, Phys. Rev. A. **50**, R3585 (1994).

[63] H. G. Muller, Phys. Rev. A. **60**, 1341 (1999).

[64] A. deBohan, P. Antoine, D. B. Milosevic, B. Piraux, Phys. Rev. Lett. **81**, 1837 (1998).

[65] H. Rabitz, R. de Vivie-Riedle, M. Motzkus, K. Kompa, Science **288**, 824 (2000).

[66] W. P. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, Numerical Recipes, Cambridge University Press, Cambridge (1986)

[67] P. Dietrich, F. Krausz, P. B. Corkum, Opt. Lett. **25**, 16 (2000).

[68] H. R. Telle, G. Steinmeyer, A. E. Dunlop, J. Stenger, D. H. Shutter, U. Keller, Appl. Phys. B **69**, 327 (1999).

[69] G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther, P. Villoresi, M. Nisoli, S. Stagira, E. Priori, S. De Silvestri, Nature, im Druck

# Danksagung

An erster Stelle danke ich Herrn Prof. Dr. H. Walther für die Möglichkeit, am Max-Planck-Institut für Quantenoptik an einem sehr interessanten und hochaktuellen Thema arbeiten zu können, für sein Vertrauen, für seine Unterstützung und für die optimalen Arbeitsbedingungen an seinem Institut.

Besonders bedanken möchte ich mich bei Dr. Gerhard Paulus für die außergewöhnlich gute Zusammenarbeit im Labor und für die hilfreichen und klärenden Diskussionen, die die letzten Jahre zu einer spannenden und kurzweiligen Zeit gemacht haben. Mein Dank geht auch an das wechselnde Team von Mitarbeitern, die die vielen Stunden im Labor mit mir teilten: Dr. Felix Zacher, Dr. Alexander Dreischuh und Fabrizio Lindner sowie von theoretischer Seite Dr. Richard Kopold und Dr. Wilhelm Becker.

Weiterhin möchte ich mich bedanken bei:

- meinem Zimmerkollegen Dr. Steffen Köhler für seine neu entdeckte Liebe zur Ordnung und bei Gerhard Guthörlein für die Tips und Tricks rund um den PC.

- dem Team der Silberatomfalle für die Abwechslung beim Tischtennisspielen: Dr. Gerald Uhlenberg und Dr. Jidong Hou.

- der gesamten Arbeitsgruppe für die freundliche Atmosphäre: Thomas Becker, Simon Brattke, Mario Eichenseer, Mathias Keller, Dr. Wolfgang Lange, Volker Ludsteck, Dr. Giovanna Morigi, Christian Schwedes, Dr. Joachim von Zanthier, Tobias Schneider und allen Mitarbeitern am MPQ.

- Michael Jost, stellvertretend für die Laser Plasma Gruppe, für die guten Tips und die kleinen Leihgaben.

- Herrn Baiker für die Unterstützung und zuverlässige Durchführung von großen und kleinen Projekten, Herrn Schönauer für die Bereitschaft, alles Unmögliche so kompakt wie möglich zu konstruieren, und der Werkstatt für die anschließende Verwirklichung sowie Herrn Fölsner für die hauchdünnen Silberfolien.

- meinen Eltern, ohne deren Hilfe mein Studium und die Promotion sicherlich nicht so möglich gewesen wären.

Zum Schluss steht ein ganz besonders herzliches “Danke schön!” an meine Frau und meine kleine Tochter.

# Lebenslauf

Jan Felix Grasbon

geb. 13.11.1969 in Weilheim i.Obb.

| | |
|---|---|
| Familienstand | verheiratet mit Heidi A. Grasbon, geb. Szycher<br>eine Tochter (Janina Leila, 17.07.2000) |
| 1976 bis 1980 | Grundschule in Pasing, München |
| 1980 bis 1989 | Gymnasium in Pfaffenhofen a.d. Ilm |
| Juli 1989 | Abitur |
| Okt. 1989 bis Jan. 1991 | Zivildienst beim Bund Naturschutz in Pfaffenhofen a.d. Ilm |
| Feb. 1991 bis Aug. 1994 und<br>Sept. 1995 bis Juni 1996 | Studium der Physik an der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg |
| Sept. 1994 bis Aug. 1995 | Studium der Physik an der University of Connecticut in Storrs, CT, USA |
| Mai 1995 | Master of Science |
| Juli 1996 bis Juni 1997 | Diplomarbeit am Institut für angewandte Physik der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg |
| Juni 1997 | Diplom der Physik |
| Seit Sept. 1997 | Dissertationsarbeit am MPI für Quantenoptik (Prof. H. Walther) |