
Mehrphotonen-Ionisationsprozesse mit intensiven Laserpulsen

Michael G. Schätzel



München 2006

Mehrphotonen-Ionisationsprozesse mit intensiven Laserpulsen

Michael G. Schätzel

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

vorgelegt von
Michael G. Schätzel
aus Mettmann

München, im Januar 2006

Erstgutachter: PROF. DR. HERBERT WALTHER

Zweitgutachter: PROF. DR. EBERHARD RIEDLE

Tag der mündlichen Prüfung: 27. März 2006

Abstract

When free atoms interact with intense laser fields, there are three main processes of importance: high harmonic generation (HHG), above-threshold ionization (ATI) and non-sequential double ionization (NSDI). All three of these multi-photon processes are physically strongly related to each other, they all share a common behaviour of the electron dynamics: First, an electron is ionized, then it is accelerated in the external field, and when returning to the parent ion, it can exert its kinetic energy to initialize the processes mentioned above.

The subject of this thesis is the investigation of ATI and NSDI of atoms and simple molecules. Aside from two different species of matter, there are also two different kinds of laser pulses available for comparison. The femtosecond lasers used here differ in their specifications: one of them delivers "ordinary" femtosecond pulses, consisting of many optical cycles of the underlying electric field (*many-cycle pulses*), while the other one delivers extremely short pulses, only consisting of very few optical cycles (*few-cycle pulses*). The latter case is the reason that a new physical quantity, the *absolute phase* or *CEO-phase* (*Carrier-Envelope Offset*), comes into play. This quantity is defined as the relative phase of the envelope of the pulse and the underlying field. The experiments of this thesis compare the behaviour of multi-photon effects under these different conditions. It can be shown, that not only qualitatively new effects appear depending on the absolute phase, but it is also possible to gain insight into inner-atomic processes with attosecond precision.

Most of the observed processes can be explained by means of an intuitive, semi-classical model. Nevertheless, pure quantum-effects were also observed. One example is interference effects of ATI spectra with few-cycle pulses in analogy to the double-slit experiment of matter waves. As another example, the level-structure of the investigated atoms dominates the features of the energy distribution of the ATI-electrons.

As a useful application of the discussed phase measurement, it was investigated how to apply the special features of ATI to implement a new stabilization scheme for the absolute phase of a few-cycle pulse laser system. In the frame of this work, the lasers used have been significantly improved. Those activities are also described in the thesis.

Kurzfassung

Bei der Wechselwirkung von freien Atomen mit intensiven Laserfeldern sind vor allem drei Prozesse von Relevanz: die Erzeugung hoher Harmonischer (HHG), die Above-Threshold Ionisation (ATI) und die nicht-sequentielle Doppelionisation (NSDI). Alle drei Mehrphotonenprozesse sind physikalisch eng miteinander verwandt, da ihnen der gleiche Elementarprozeß zugrunde liegt: Ein Elektron wird aus dem Atomverbund entfernt, vom äußeren Feld beschleunigt und kehrt schließlich zum Mutterion zurück, wo es mittels seiner kinetischen Energie die genannten Effekte initiieren kann.

Diese Arbeit untersucht ATI und NSDI an Atomen und einfachen Molekülen. Dabei stehen mit zwei grundverschiedenen Femtosekundenlasersystemen auch zwei sehr unterschiedliche Pulsparameterbereiche zur Verfügung: Einmal die »üblichen« ultrakurzen Pulse, die sich aus vielen optischen Zyklen der Trägerwelle zusammensetzen und zum anderen Pulse, die nur aus sehr wenigen optischen Zyklen bestehen. Im letzteren Fall gewinnt die relative Phase zwischen Einhüllender des Pulses und seiner Trägerfrequenz, die sogenannte *absolute* oder *CEO-Phase* (*Carrier-Envelope Offset*), physikalisch große Bedeutung. Die hier durchgeführten Untersuchungen vergleichen das Verhalten der Mehrphotonenprozesse in diesen beiden Pulslängenregimen. Es zeigt sich, daß in Abhängigkeit der absoluten Phase nicht nur qualitativ neue Effekte auftreten, sondern zudem Einblicke in inneratomare Prozesse mit Attosekunden-genauigkeit erlangt werden können.

Obwohl die meisten der beobachteten Effekte durch ein intuitives, semi-klassisches Modell beschrieben werden können, zeigen sich unter bestimmten Bedingungen auch Quantenphänomene. Ein Beispiel sind die mit Wenigzyklenpulsen erzeugten Interferenzstrukturen in ATI-Spektren, in Analogie zur Interferenz von Materiewellen im Doppelspalt-Experiment. In einem anderen Experiment werden die beobachteten Strukturen in den Energieverteilungen der ATI-Elektronen unmittelbar von der atomaren Niveaustuktur bestimmt.

Neue, interessante Anwendungen der Bestimmung der absoluten Phase ergeben sich durch den Einsatz dieses Verfahrens zur erweiterten Phasenstabilisierung eines Wenigzyklenpuls lasers. Im Rahmen dieser Arbeit wurden zudem zahlreiche Modifikationen an einem bestehenden Lasersystem vorgenommen, die hier ebenfalls vorgestellt werden.

Inhaltsverzeichnis

Titel	iii
Abstract	v
Kurzfassung	vi
Inhaltsverzeichnis	vii
1. Einleitung und Vorbemerkungen	1
2. Wechselwirkung von Materie mit starken Laserfeldern	5
2.1. Zusammenbruch der Störungstheorie	5
2.2. Starkfeldnäherung und 2-Stufen-Modell	7
2.2.1. Das 3-Stufen-Modell	9
2.2.1.1. Ionisation	10
2.2.1.2. Freies Elektron im Laserfeld	12
2.3. Andere theoretische Ansätze	12
2.3.1. Keldysh-artige Theorien	13
2.3.2. Numerische Simulationen	13
2.4. Phänomene bei der Wechselwirkung von Atomen mit starken Laserfeldern	13
2.4.1. Photoelektronen weit jenseits der Ionisationsschwelle (ATI)	14
2.4.1.1. Makroskopische Effekte: Volumeneffekt	15
2.4.1.2. ATI in Alkaliatomen	15
2.4.2. Nicht-sequentielle Doppelionisation (NSDI)	18
2.4.3. Erzeugung hoher Harmonischer (HHG)	19
2.4.3.1. Makroskopische Effekte: Phasen Anpassung	20
2.5. Gaußsche Optik	21
3. Ultrakurze Laserpulse bei hoher Repetitionsrate	23
3.1. Bereits bestehendes Lasersystem	24

3.1.1.	Oszillator	25
3.1.2.	Regenerativer Verstärker: Coherent RegA 9050	26
3.1.3.	Proctor-Wise Prismenkompressor	26
3.1.4.	Pulsformung: Spatial Light Modulator (SLM) im 4f- Aufbau	27
3.1.5.	Pumplaser	28
3.1.5.1.	Spectra Physics Millennia <i>Vi</i>	28
3.1.5.2.	Coherent Innova Sabre R TSM 25	29
3.2.	Erweiterungen des Lasersystems	30
3.2.1.	Erhöhung der Laserleistung	31
3.2.1.1.	Kryogene Verstärkerstufe	34
3.2.1.2.	Cryotiger	35
3.2.1.3.	Effekte der kryogenen Kühlstufe	37
3.2.2.	Verkürzung der Pulslänge	38
3.2.2.1.	Selbstphasenmodulation (SPM)	39
3.2.2.2.	Hohlfaserkompressor	39
3.2.3.	Strahlstabilisierung	43
4.	Ionisationsexperimente mit ultrakurzen Pulsen	47
4.1.	Elektronenkorrelationsmessungen	48
4.1.1.	Experimenteller Aufbau: Reaktionsmikroskop	48
4.1.2.	NSDI diesseits der Ionisationsschwelle	51
4.1.2.1.	Ionische Impulsverteilung	53
4.1.2.2.	Elektronische Impulskorrelation	55
4.1.2.3.	Klassische Rechtfertigung der Ionisation dies- seits der Schwelle	56
4.1.3.	Einfluß der Molekülstruktur auf die NSDI	58
4.1.3.1.	Ionische Impulsverteilung	58
4.1.3.2.	Elektronische Impulskorrelation	60
4.1.3.3.	Modellrechnung für sequentielle Ionisation . . .	61
4.1.3.4.	Klassisches Modell für NSDI mit Erweiterung für Moleküle	63
4.2.	ATI bei Alkaliatomen	66
4.2.1.	Experimenteller Aufbau: ATI-Spektrometer	67
4.2.1.1.	Grenzen der Apparatur	70
4.2.1.2.	Variation der Laserparameter in einer Messung	70
4.2.2.	Wechselwirkung von Alkaliatomen mit 40 fs-Pulsen . . .	71
4.2.2.1.	Interpretation der Struktur eines ATI-Spek- trums am Beispiel von Cs	72

4.2.2.2. Weitere Beobachtungen	75
5. Wenigzyklenpulse und die absolute Phase	77
5.1. Die absolute oder CEO-Phase	78
5.1.1. Phasenstabilisierung mit der f - $2f$ -Methode	79
5.2. Das phasenstabilisierte 1 kHz-Lasersystem <i>LWS 0,1</i>	81
5.3. Stereo-ATI-Phasenmeter	85
5.3.1. Langzeitstabilisierung der absoluten Phase	87
5.3.2. Auf dem Weg zum Einzelschuß-Phasenmeter	89
5.3.2.1. Grundsätzliche Überlegungen	89
5.3.2.2. Umsetzung	92
5.3.2.3. Ausblick	94
6. Ionisationsexperimente in Abhängigkeit von der absoluten Phase	95
6.1. NSDI in Abhängigkeit von der absoluten Phase	95
6.1.1. Experimenteller Aufbau	96
6.1.2. Ionische Impulsverteilung	97
6.1.3. Klassisches Modell und Interpretation der Messung	98
6.2. Quanteninterferenz: Attosekunden-Doppelspalt	101
6.2.1. Experimentell aquirierte Daten	104
6.2.2. Interpretation und Modellbeschreibung	106
7. Zusammenfassung und Ausblick	111
A. Atomare Einheiten	113
Publikationsliste	115
Abbildungsverzeichnis	117
Literaturverzeichnis	119
Sachregister	131
Danksagung	136
Lebenslauf	138

*Die Natur verbirgt ihr Geheimnis
durch die Erhabenheit ihres Wesens,
aber nicht durch List*

ALBERT EINSTEIN

1. Einleitung und Vorbemerkungen

Ein Blick zurück, ein Blick nach vorn: In der Einleitung wird der Themenbereich der Dissertation umrissen und in den historischen Kontext gesetzt. Die Bedeutung von Lasern, speziell von Kurzpulslasern, für die Forschung in der Atomphysik wird erläutert, ebenso wie einige wichtige Entdeckungen und Anwendungen aus diesem Themenkreis.

 EBEN DEM Transistor ist der Laser [ST58, Mai60] zweifellos die bedeutendste Entwicklung des vorigen Jahrhunderts. Heutzutage ist seine Präsenz ubiquitär: Im Alltagsleben in CD- und DVD-Laufwerken, Laserscanner-Strichcodelesegeräten und Laserpointern, in der Kommunikationstechnik und Datenübertragung durch Glasfaserkabel, in der Medizin zur Augendiagnostik, LASIK^{i} oder als Laserskalpell, in der Werkstofftechnik zum Präzisionsschneiden und Schweißen, sowie in der Meßtechnik beim Kohärenzradar und Lidar^{ii}, um nur einige wenige Beispiele zu nennen. Das Anwendungsfeld von Lasern in Industrie, Technik und Medizin ist schier unüberschaubar. Aber auch und gerade in der Forschung sind sie ein unverzichtbares Werkzeug: Moderne Hochpräzisionspektroskopie und Interferometrie wäre ohne Laser nicht denkbar, die Erzeugung ultrakalter Atome ist effektiv nur mit Laserkühlung zu erreichen und nichtklassische Eigenschaften des Lichtes sind nur mittels Laserstrahlung zu realisieren.

So überrascht es nicht, daß die Laserentwicklung selbst ein wichtiger Bereich der Forschung ist. Im Kontext dieser Arbeit besonders relevant ist das Feld der Kurzpulslaser. Konnten durch Applikation der aktiven Güteschaltung nur Pulse im ns-Regime erzeugt werden, so verkürzte sich die Pulslänge mit der Entdeckung der passiven Modenkopplung [SKS91] in den Bereich von Femtosekunden. Mit solch kurzen Pulsen stehen immense Spitzenintensitäten zur Verfügung, so daß das Feld der nichtlinearen Optik, welches von der Beobachtung der zweiten Harmonischen eingeläutet wurde [FHPW61], zu einem extrem weit aufgefächerten und komplexen Forschungsgebiet herangewachsen ist (s. z. B. [She84, Rul98]). Eine Rückkopplung hiervon auf die Laserentwicklung ist die Erzeugung immer kürzerer Pulse durch das Ausnutzen nichtlinearer

^{i}LASIK: Laser In Situ Keratomileusis.

^{ii}Lidar: Light detection and ranging.

Effekte. So sind heute bereits kompakte Lasersysteme (*tabletop*) kommerziell erhältlich, die mit einer Repetitionsrate im kHz-Bereich Pulse von nur 5 fs Länge mit Spitzenintensitäten von 10^{15} W/cm² erzeugen.

Im Gegensatz zur Forschung mit großformatigen Hochenergielasern, die mit ihren immensen Intensitäten ($> 10^{20}$ W/cm²) bei der Wechselwirkung mit Materie sofort ein vollständiges, stark relativistisches Plasma erzeugen, läßt sich die Wechselwirkung solcher Tabletop-Systeme mit Materie noch durch die Beschreibungen der Atomphysik verstehen. Diese Arbeit beschäftigt sich denn auch mit dem Verhalten diluter Gase, die Laserintensitäten diesseits einiger 10^{14} W/cm² ausgesetzt werden. Alle physikalischen Phänomene in diesem Bereich sind Mehrphotonenprozesse [GM31, VD65, HRB65], da die Energie eines einzelnen Photons hier zu klein ist (typisch $\hbar\omega = 1,55$ eV), um mittels des gewöhnlichen Photoeffektes zu ionisieren. Dennoch agieren die Atome noch immer einzeln und nicht als Kollektiv.

Der bekannteste dieser Mehrphotonenprozesse ist die Erzeugung hoher Harmonischer (HHG), also die Erzeugung kohärenter Strahlung mit einem ungeradzahligen Vielfachen der Frequenz der eingehenden Laserfrequenz [GMM⁺77, RSE78]. Vor allem nach der Entdeckung des Vorhandenseins eines Plateaus, also eines Bereiches, in dem die Intensität aufeinanderfolgender Harmonischer nicht abnimmt [MGJ⁺87, FLL⁺88, LLF⁺89], wurde klar, daß hierdurch eine Methode zur relativ effizienten Erzeugung kohärenter Strahlung im VUV und XUV-Bereich zur Verfügung steht. Mögliche zukünftige Anwendungen liegen in der EUV-Lithographie oder in spektroskopischen Untersuchungen im Wasserfenster^{iii}. Da die generierten Harmonischen eine feste Phasenbeziehung zueinander haben, ist es auch möglich, Attosekundenpulse durch die Superposition mehrerer Harmonischer zu erzeugen [DHK⁺01, PTB⁺01].

Ein physikalisch eng mit der HHG verbundener Photoionisationseffekt, der sogar bereits früher entdeckt wurde, ist die sogenannte Above-Threshold Ionisation (ATI). Hierbei werden im Energiespektrum der Photoelektronen charakteristische Peaks beobachtet, die jeweils um die Photonenenergie der anregenden Laserstrahlung separiert sind [AFM⁺79]. Ähnlich wie bei der HHG, nimmt auch hier die Intensität aufeinanderfolgender Maxima exponentiell ab, um dann in einen flach verlaufenden Bereich überzugehen [PNX⁺94]. Hieran wird ersichtlich, daß eine Beschreibung mittels der Störungstheorie wenig Sinn macht. Speziell in unserer Forschungsgruppe hat die ATI In allerjüngster Zeit Verwendung gefunden, um die *absolute Phase* von extem kurzen Laserpulsen zu bestimmen [PGW⁺01, PLW⁺03]. Zudem hat sie das Potential, um physikalische Prozesse mit Attosekundengenauigkeit zu untersuchen [LSW⁺05].

Ein dritter Effekt, der mit HHG und ATI eng verwandt ist, ist die nicht-sequentielle Doppelionisation (NSDI). Der dabei beobachtete Effekt besteht darin, daß die Doppelionisation in starken Laserfeldern viel effektiver

^{iii}Das Wasserfenster ist der für die Biologie interessante Spektralbereich unterhalb der Absorptionskante des Wassers aber oberhalb derjenigen des Kohlenstoffs.

Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms
 P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, and G. Petite
Centre d'Etudes Nucleaires de Saclay, Service de Physique Atomique, 91190 Gif-sur-Yvette, France

and
 N. K. Rahman
Laboratorio di Chimica Quantistica ed Energetica Molecolare del Consiglio Nazionale delle Ricerche, 36100 Pisa, Italy (Received 19 January 1979)
 The energy spectrum of electrons produced by multiphoton ionization of xenon atoms has been analyzed with a retarding potential technique. We have shown that the discrete absorption of photons above the six-photon ionization threshold was observable under special field conditions. A simple model based upon inverse bremsstrahlung gives a reasonable agreement with the experiments.

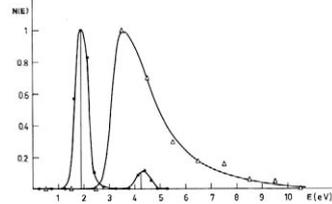


FIG. 3. Energy spectra of the emitted electrons for two photon energies: triangles, $\hbar\omega = 1.17$ eV, $I = 4 \times 10^{13}$ W/cm², $E_{\text{max}} = 4$ eV; circles, $\hbar\omega = 2.34$ eV, $I = 8 \times 10^{12}$ W/cm², $E_{\text{max}} = 0.2$ eV (E_{max} is the maximum energy gained in the field gradient). The solid straight lines at 1.90 and 4.25 eV have heights proportional to the values of $(d\sigma^{(n)}/d\Omega) (d\sigma^{(e)})/d\Omega)^{-1}$ calculated from Eq. (3) using an intensity of 1.0×10^{13} W/cm². The solid curves have been hand drawn through the experimental points.

ATI & NSDI

Plateau in Above Threshold Ionization Spectra

G. G. Paulus,¹ W. Nicklich,¹ Hualu Xu,² P. Lambropoulos,^{1,3} and H. Walther^{1,2}
¹Max-Planck-Institut für Quantenoptik, 8538 Garching, Germany
²Sektion Physik der Universität München, Germany
³Department of Physics, University of Crete, Greece
(Received 28 October 1993)

We present photoelectron energy spectra for the rare gas atoms in strong 40 fs, 630 nm laser pulses. A new property on the above threshold ionization distribution is described, namely, a plateau. Numerical calculations using one- and three-dimensional models suggest that at least in part this is a one-electron effect. All rare gas atoms investigated show similar behavior, indicating that the plateau in above threshold ionization is a universal phenomenon. We discuss a simple mechanism possibly responsible for the plateau.

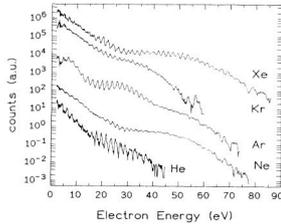


FIG. 1. ATI spectra of all rare gases. The intensity was 3×10^{14} W/cm² for He and 2×10^{14} W/cm² for all the others. (The curves are separated in the vertical direction.)

Multiply charged ions induced by multiphoton absorption in rare gases at 0.53 μm

A. F'huillier, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus
Centre d'Etudes Nucleaires de Saclay, Service de Physique des Atomes et des Surfaces, 91190 Gif-sur-Yvette Cedex, France (Received 20 December 1982)

Up to quadruply charged ions are induced in Xe atoms by a 50-psec laser pulse at 0.53 μm in the 10^{12} W/cm² range. The mechanism of the formation of Xe^{4+} ions is elucidated. In the lowest intensity range, Xe^{2+} ions are produced by direct 15-photon absorption from the ground state of the atoms, while at a higher intensity Xe^{2+} ions are produced by a stepwise process via Xe^+ ions. These two processes take place at distinctly different intensities. A kinetic model using rate equations affords a good fit with experimental results. Moreover, for the first time it was possible to obtain the multiphoton ionization cross sections related to the two-electron removal from Xe atoms, as well as the one-electron removal from Xe^+ ions.

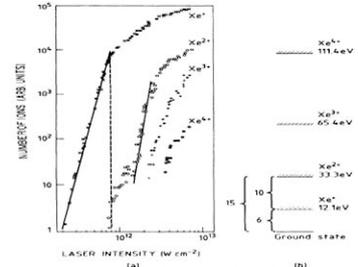


FIG. 3. (a) A double-logarithmic plot of the variations in the number of Xe ions formed as a function of laser intensity I . The vertical dashed line indicates the saturation intensity I_s which induces a marked change in the intensity dependence of Xe^+ and Xe^{2+} ions. (b) Schematic representation of the 15-photon one-step process and the (6+10)-photon two-step process producing Xe^{2+} ions.

Abb. 1.1.: Historische Meßkurven: Kopien aus den Originalpublikationen. Die Entdeckung der ATI (*links*: [AFM⁺79]), des ATI-Plateaus (*mittig*: [PNX⁺94]) und der NSDI (*rechts*, damals jedoch noch in falscher Deutung: [LLMM83]).

verläuft als dies gemäß der Theorie des sequentiellen Tunneln der Elektronen zu erwarten gewesen wäre [LLMM83]. In differentiellen Untersuchungen zeigt sich, daß die beiden Elektronen eine starke Korrelation aufweisen [MUS⁺96, MFS⁺00, ELR⁺04]. Es stellt sich heraus, daß der nichtsequentielle Prozeß der Doppelionisation durch nahezu den gleichen Mechanismus beschrieben werden kann, wie die zuvor angesprochenen Effekte.

Natürlich beschränkt sich das Interesse der Wechselwirkung von Materie mit starken Laserfeldern nicht nur auf Atome. Bei der Arbeit mit Molekülen können Laser sowohl die inter-, als auch die intra-molekulare Dynamik beeinflussen. Zudem können asymmetrische Moleküle durch elektrische Dipolkräfte ausgerichtet werden. Als krönendes Beispiel der Manipulation durch Laserpulse sei auf die dynamische Kontrolle chemischer Reaktionen verwiesen [ABB⁺98]. Um diese Technik effektiv einsetzen zu können, ist ein tiefes Verständnis der zugrundeliegenden Prozesse und Dynamiken unabdingbar. Hierzu gehören auch Ionisationsmechanismen von einfachen Molekülen in starken Laserfeldern.

Diese Arbeit beschäftigt sich nun auf der einen Seite mit speziellen Aspekten der Laserentwicklung, auf der anderen Seite mit der Wechselwirkung von Atomen und Molekülen mit eben diesen Laserpulsen. Die Experimente wurden größtenteils im Max-Planck-Institut für Quantenoptik (MPQ) in der

Abteilung von Prof. H. WALTHER unter der Leitung von Prof. G. G. PAULUS durchgeführt, teilweise in Kollaboration mit Prof. W. SANDNER und Dr. H. ROTTKE vom Max-Born-Institut (MBI), sowie (teilweise an der TU Wien) in Kollaboration mit Prof. F. KRAUSZ.

Der *Aufbau* der Arbeit gliedert sich wie folgt: Die beiden verwendeten Lasersysteme werden jeweils in den Kapiteln 3 und 5 beschrieben. Bei den beiden Systemen handelt es sich um Ti:Saphir-Laser, jedoch sind die jeweiligen Spezifikationen sehr unterschiedlich: Der eine Laser liefert phasenstabilisierte Pulse von 5 fs Länge, der andere lediglich Pulse von 35 fs Länge, dafür aber mit einer sehr hohen Repetitionsrate von 100 kHz. Abschnitt 3.2 geht intensiv auf einige während dieser Arbeit durchgeführte Modifikationen des 100 kHz-Lasers ein. Die Beschreibung der für die Messungen verwendeten Elektronenspektrometer findet sich jeweils in den Abs. 4.1.1 und 4.2.1. In Abs. 5.3 wird diskutiert, wie mittels des ATI-Spektrometers die absolute Phase eines Laserpulses gemessen und über beliebig lange Zeiten stabilisiert werden kann.

Kapitel 2 stellt den notwendigen theoretische Hintergrund bereit, der benötigt wird, um die zuvor angesprochenen Mehrphotoneneffekte zu verstehen. Insbesondere wird ein semiklassisches Modell aufgezeigt, welches in sehr intuitiver Form die meisten Effekte überraschend akkurat beschreibt. In den Abs. 4.1.2 und 6.1 werden dann zwei Meßkampagnen zur NSDI von Atomen vorgestellt. Die eine untersucht das Verhalten bei niedrigen Laserintensitäten, die andere die Abhängigkeit der NSDI von der absoluten Phase φ . Eine Meßkampagne zur NSDI von Molekülen findet sich in Abs. 4.1.3. Hier geht es vor allem darum, den Einfluß der Symmetrie der Molekülstruktur auf den NSDI-Prozeß zu untersuchen und die Ergebnisse mit analogen Prozessen in Atomen zu vergleichen. Weiter werden in Abs. 4.2 ATI-Messungen an Alkaliatomen vorgestellt, in der wegen nahezu resonanter Zwischenzustände, sowie der niedrigen Ionisationsschwelle, starke Einflüsse der modifizierten Niveaustuktur der Atome beobachtet werden. Abschnitt 6.2 zeigt schließlich die Analyse von Interferenzerscheinungen in ATI-Spektren von Edelgasen, wie sie in Abhängigkeit von der absoluten Phase φ auftreten. Hierbei wird insbesondere die Analogie zu YOUNGS Doppelspaltexperiment aufgezeigt.

2. Wechselwirkung von Materie mit starken Laserfeldern

Dieses Kapitel stellt die grundlegende theoretische Basis der in dieser Arbeit behandelten Themengebiete zur Verfügung. Spezielle Erweiterungen zu dem hier bereitgestellten Rüstzeug finden sich jeweils in den dazu relevanten Kapiteln selbst.



NACHDEM IM Kapitel 1 der Themenkreis dieser Dissertation historisch eingeführt und motiviert wurde, werden hier die einzelnen relevanten Sachgebiete genauer präsentiert und die zum Verständnis notwendigen theoretische Beschreibungen bereitgestellt. Hierbei handelt es sich lediglich um eine Übersicht bereits etablierter Erkenntnisse. Weiterführende, spezielle Ergänzungen der theoretischen Modelle werden in den zugehörigen Kapiteln selbst erarbeitet.

Hauptsächlich behandelt dieses Kapitel, wie der Titel auch suggeriert, das Ionisationsverhalten von Atomen in starken Laserfeldern. Im Anschluß hieran folgt noch eine kurze Erwähnung einiger optischer Details (Abs. 2.5), die zur Erzeugung »starker Laserfelder« notwendig sind.

2.1. Zusammenbruch der Störungstheorie

Gemäß EINSTEINS Erklärung des photoelektrischen Effekts [Ein05] und damit auch der Photoionisation, muß die Photonenenergie $E = h\nu = \hbar\omega$ größer als das Ionisationspotential I_p sein. Das Elektron nimmt dann gemäß

$$E = \hbar\omega - I_p \tag{2.1}$$

die verbleibende Photonenenergie als kinetische Energie auf. Für $\hbar\omega < I_p$ kann bei hinreichend großen Photonenflüssen immer noch Ionisation beobachtet werden. Dieser modifizierte Photoeffekt läuft für ein Atom A in Wechselwirkung mit N Photonen gemäß



ab und ist als Mehrphotonenionisation (MPI) N -ter Ordnung bekannt [VD65, HRB65]. Für $N = 1$ erhält man wieder den Spezialfall des gewöhnlichen Photoeffekts. Die Ionisationsrate r wird bei nicht zu großen Laserintensitäten ($I = \mathcal{E}^2 < 10^{13} \text{ W/cm}^2$) gut durch die Störungstheorie beschrieben [FPAC82, MM91] und ergibt sich mit dem Wirkungsquerschnitt σ_N zu

$$r = \sigma_N I^N. \quad (2.3)$$

Ab einer kritischen Laserintensität steigt die Ionisationsrate r nicht mehr weiter mit I an (vgl. Abb. 1.1, rechts) [LLMM85], was durch die Entvölkerung des Grundzustandes (Sättigung) begründet werden kann [BRK93]. Die integrierte Elektronenrate steigt dann zwar immer noch mit $I^{3/2}$ an, dies ist aber ein rein geometrischer Effekt, aufgrund der Vergrößerung des Sättigungsvolumens. Ein interessanterer physikalischer Effekt, der bei steigender Laserintensität beobachtet werden kann, ist die Above-Threshold Ionisation (ATI) [AFM⁺79]: Im Elektronenspektrum werden mehrere Maxima beobachtet (Abb. 1.1, links), deren Position durch

$$E_M = (N + M) \hbar\omega - I_p \quad (2.4)$$

gegeben ist, wobei M hier die Anzahl der Photonen angibt, die zusätzlich zu den N zur Ionisation notwendigen Photonen absorbiert wurde. Das Maximum bei E_0 entspricht hierbei der gewöhnlichen MPI.

Für nicht zu große Feldstärken gehorcht die relative Stärke der einzelnen ATI-Maxima weiterhin der störungstheoretischen Ionisationswahrscheinlichkeit (2.3) [FPAC82]. Sobald die Intensität aber weiter steigt, und damit auch die Anzahl beobachtbarer ATI-Maxima, gibt es drastische Abweichungen von diesem Verhalten. Am auffälligsten sind die Unterdrückung der niedrigsten ATI-Maxima (*peak suppression*) und das sich ausbildende *Plateau* bei Maxima sehr hoher Ordnung. Beide Effekte werden weiter unten (Abs. 2.4.1) noch besprochen.

An dieser Stelle sei nur darauf hingewiesen, daß die Vorhersagen der Störungstheorie in den für uns relevanten Intensitätsbereichen nahezu vollständig unbrauchbar werden. Dies ist wenig überraschend, denn eine Grundvoraussetzung der Störungstheorie ist das Vorhandensein eines starken Potentials und einer *schwachen* Störung. Als einfache Abschätzung der Stärke des vom Laser erzeugten elektrischen Feldes sei auf

$$\mathcal{E} \left[\frac{\text{V}}{\text{cm}} \right] \hat{=} 22,4 \cdot \sqrt{I \left[\frac{\text{W}}{\text{cm}^2} \right]} \quad (2.5)$$

verwiesen. Für $I = 10^{15} \text{ W/cm}^2$ liegt die Stärke des \mathcal{E} -Feldes bereits in der Größenordnung der inneratomaren Coulomb-Felder! Eine schwache Störung ist dies nicht mehr.

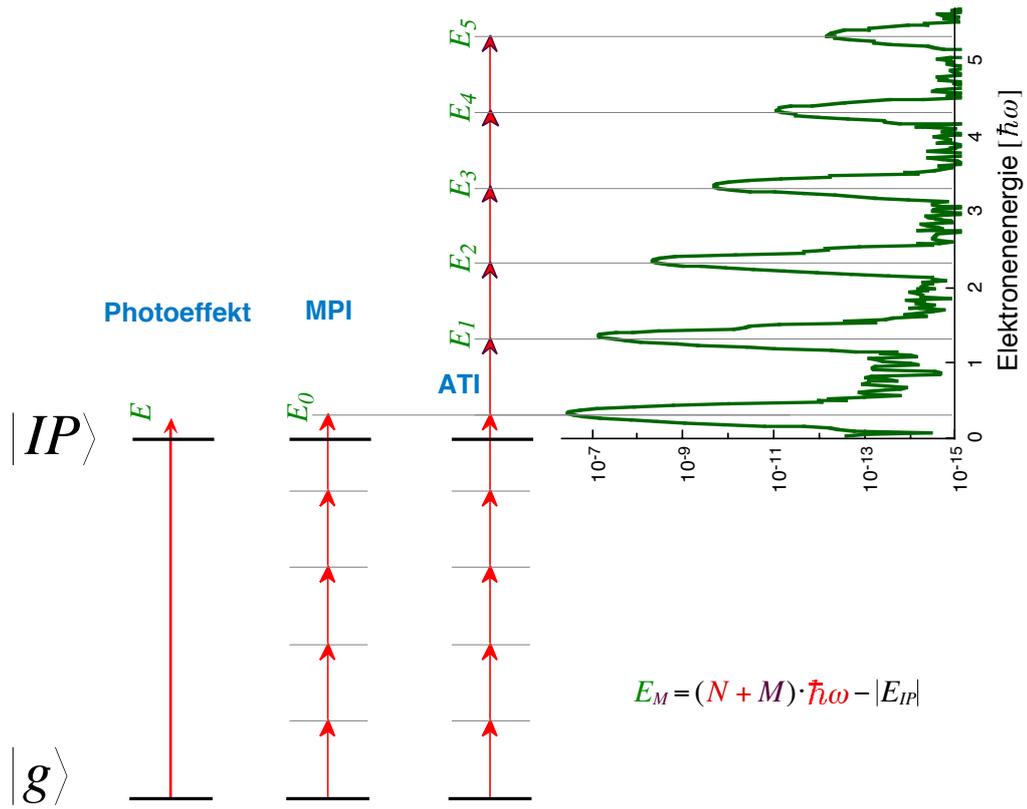


Abb. 2.1.: Schematische Darstellung der Ionisation für den einfachen Photoeffekt (*links*, $\hbar\omega > I_p$), die Mehrphotonenionisation (MPI) (*mittig*, $\hbar\omega \ll I_p$) und die Above-Threshold Ionisation (ATI) (*rechts*).

2.2. Starkfeldnäherung und 2-Stufen-Modell

Die zeitabhängige Schrödingergleichung für ein gebundenes Elektron in einem externen Laserfeld ist durch

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = \hat{H}(t) |\psi(t)\rangle = \left(\hat{H}_0 + \hat{V}(t) \right) |\psi(t)\rangle \quad (2.6)$$

gegeben, mit dem ungestörten Hamiltonoperator \hat{H}_0 (ohne Laserfeld) und dem äußeren Potential des Lasers $\hat{V}(t)$, für das in atomaren Einheiten (vgl. Anhang A) gilt: $\hat{V}(t) = z \cdot \mathcal{E}(t)$. Die formale Lösung von Gl. (2.6) lautet

$$|\psi(t)\rangle = \exp\left(-i \int_{t_0}^t \hat{H}(\tau) d\tau\right) |\phi_0\rangle, \quad (2.7)$$

für den Anfangszustand $|\phi_0\rangle$ zum Zeitpunkt t_0 . Die Übergangswahrscheinlichkeit a_{f_0} vom Anfangszustand $|\phi_0\rangle$ auf einen Endzustand $|\phi_f\rangle$ ergibt sich hieraus

zu

$$a_{f0}(t_f \leftarrow t_0) = -i \int_{t_0}^{t_f} \left\langle \phi_f \left| e^{-i\hat{H}_0(t_f-\tau)} \hat{V}(\tau) e^{-i \int_{t_0}^{\tau} \hat{H}(\tau') d\tau'} \right| \phi_0 \right\rangle d\tau. \quad (2.8)$$

Durch geeignete Algebra kann dies unter Ausnutzung der Symmetrieeigenschaften der Schrödingergleichung zu

$$a_{f0}(t_f \leftarrow t_0) = -i \int_{t_0}^{t_f} \left\langle \phi_f \left| e^{-i \int_{\tau}^{t_f} \hat{H}(\tau') d\tau'} \hat{V}(\tau) e^{-i\hat{H}_0(\tau-t_0)} \right| \phi_0 \right\rangle d\tau \quad (2.9)$$

umgeformt werden. Die physikalische Interpretation dieser Gleichung ist die folgende: Das System startet im Anfangszustand $|\phi_0\rangle$ (normalerweise der Grundzustand) und durchläuft eine zeitliche Entwicklung ohne Wechselwirkung mit dem Laserfeld, während der die Wellenfunktion lediglich ihre Phase ändert. Zum Zeitpunkt τ erfolgt die instantane Wechselwirkung mit dem äußeren Feld. In der weiteren zeitlichen Entwicklung erfährt das Systems die Wirkung des vollständigen Hamiltonoperator (einschließlich des Laserfeldes), bis die Wellenfunktion schließlich zum Zeitpunkt t_f auf den zu messenden Endzustand projiziert wird.

Die Starkfeldnäherung (SFA^{i}) besteht nun in der Annahme, daß der Einfluß des ungestörten Operators \hat{H}_0 nach dem Zeitpunkt τ vernachlässigbar ist gegenüber $\hat{V}(t)$. Dementsprechend wird der Term $\exp\left(-i \int_{\tau}^{t_f} \hat{H}(\tau') d\tau'\right)$ in Gl. (2.9) durch $\exp\left(-i \int_{\tau}^{t_f} \hat{V}(\tau') d\tau'\right)$ ersetzt. Eine Motivation für diesen Ansatz ist der Umstand, daß die Propagation eines Elektrons in einem Laserfeld gerade durch die bekannten Volkovzustände [Vol35] $\exp -i \int_{\tau}^{t_f} \hat{H}(\tau') d\tau' = \exp -i \int_{\tau}^{t_f} E(\tau') d\tau'$ gegeben ist, mit der Elektronenenergie $E(t)$. Diese Begründung ist eher mathematischer Natur, die physikalische Rechtfertigung der SFA liegt in der im Vergleich zum Laserfeld kurzen Reichweite des Coulombpotentials begründet. Trotzdem muß man sich bewußt machen, daß diese Näherung nicht frei von Problemen ist.

Gemäß der obigen Überlegungen ergibt sich nun die SFA-Wahrscheinlichkeitsamplitude, das Elektron zum Zeitpunkt t_f in einem Zustand mit Impuls \mathbf{p} zu finden, zu

$$a_{\mathbf{p}}(t_f) = -i \int_{t_0}^{t_f} \exp \left[-i \left(\int_{\tau}^{t_f} E(\tau') d\tau' - I_p(\tau) \right) \right] \langle \mathbf{p}(\tau) | \hat{V}(\tau) | g \rangle d\tau. \quad (2.10)$$

Hierbei sind $|g\rangle$ der Grundzustand (zum Zeitpunkt t_0) und I_p das Ionisationspotential. Diese Beschreibung ist anschaulich klar: Das Elektron wird zum Zeitpunkt τ aus dem Grundzustand ins Kontinuum ionisiert. Danach bewegt sich das Elektron frei im Laserfeld, ohne jede Wechselwirkung mit dem ato-

^{i}SFA: Strong-Field Approximation.

maren Potential. Während dieser Zeit akkumuliert es eine quantenmechanische Phase, die dem Integral seiner Energie entspricht. Zum Zeitpunkt t_f wird das Elektron detektiert und somit die Wellenfunktion auf den Endzustand $|\mathbf{p}\rangle$ projiziert. Der Zustand ergibt sich selbstredend aus der Integration über alle möglichen Ionisationszeitpunkte τ .

Somit teilt sich das Problem in zwei Stufen auf: Ionisation und Propagation im Laserfeld.

2.2.1. Das 3-Stufen-Modell

Die natürliche Erweiterung des 2-Stufen-Modells ist das 3-Stufen-Modell: Unter geeigneten Bedingungen ist es möglich, daß das Elektron zum Atomrumpf zurückkehrt und mit diesem wechselwirkt. Die drei Stufen sind dann:

1. Ionisation,
2. freie Propagation des Elektrons im Laserfeld,
3. Wechselwirkung mit dem Atomrumpf bei der Rückkehr.

Die ersten beiden Punkte werden im Anschluß genauer beleuchtet. Für Punkt 3 gibt es verschiedene Formen der Wechselwirkung, die zu unterschiedlichen physikalischen Phänomenen führen (vgl. Abb. 2.2):

- Rückstreuung \longrightarrow ATI (s. Abs. 2.4.1),
- Stoßionisation \longrightarrow NSDI (s. Abs. 2.4.2),
- Rekombination \longrightarrow HHG (s. Abs. 2.4.3).

Außer im Falle der Rekombination propagiert das Elektron (oder die beiden Elektronen der NSDI) anschließend wieder frei im Laserfeld.

Prinzipiell ist eine erneute Rückkehr zum Atomrumpf möglich, aber die Wahrscheinlichkeit hierzu ist verschwindend gering. Schon ein Blick auf gemessene ATI-Spektren zeigt, daß der Anteil der direkten Elektronen um viele Größenordnungen höher ist als der der rückgestreuten.

Das 2- bzw. 3-Stufen-Modell kann auch semiklassisch interpretiert werden, man spricht dann vom *Modell des einfachen Mannes* oder dem *Simple-Man's-Model* [vLM88, CBB89, PNX⁺94]. Hierbei wird die Ionisationsrate durch Tunnelionisation als gegeben angenommen. Die weitere Trajektorie des Elektrons, sowie ggf. die Rückstreuung, werden gemäß Abs. 2.2.1.2 klassisch behandelt.

Das Modell des einfachen Mannes liefert trotz seiner Simplizität erstaunlich gute Vorhersagen über das qualitative Verhalten, in vielen Punkten erhält man sogar quantitative Aussagen. In der beschriebenen Form bricht das Modell natürlich bei speziellen Problemen, wie z. B. elliptischer Polarisation, zusammen, da in diesem Fall keine Rückstreuung vorhergesagt werden kann.

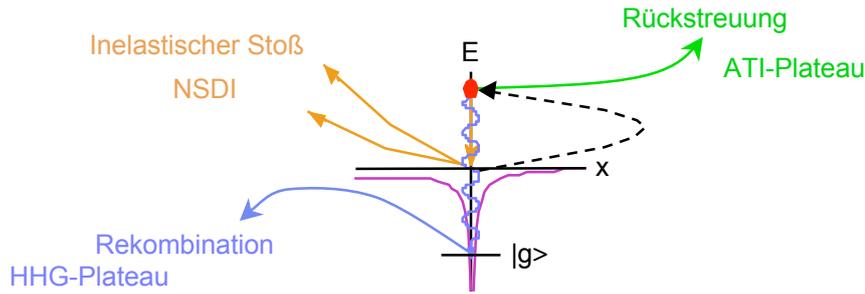


Abb. 2.2.: Schematische Darstellung der dritten Stufe des 3-Stufen-Modells. Das zum Mutterion (hier symbolisiert durch das Coulomb-Potential) zurückkehrende Elektron kann elastisch gestreut werden (\rightarrow ATI), es kann inelastisch stoßen (\rightarrow NSDI), oder es kann rekombinieren (\rightarrow HHG).

Durch einfache Erweiterungen kann das anschauliche Modell aber auch auf solche Probleme angewendet werden. Quantenmechanische Effekte, wie z. B. Interferenzphänomene, können aus der klassischen Beschreibung nicht erhalten werden – hier muß auf Zusammenhänge des nicht-klassischen Modells zurückgegriffen werden.

2.2.1.1. Ionisation

Als erster Punkt im 3-Stufen-Modell findet die Ionisation statt. Zum Verlauf des Prozesses in starken Feldern gibt es eine ganze Reihe verschiedener Modelle und entsprechend unterschiedliche Ionisationsraten r [DK94]. Die wichtigste Unterscheidung ist die Unterteilung in quasi-statische (adiabatische) und nicht-adiabatische Prozesse.

Im quasi-statischen Fall setzt man voraus, daß die Laserfrequenz so klein ist, bzw. die Keplerzeiten der beteiligten Zustände so groß sind, daß man Feld und Potential jederzeit als konstant ansehen kann. Der Ionisationsprozeß ist dann als Tunnel- oder Feldionisationseffekt, aus einem durch das äußere Feld modifizierten atomaren Potential, zu verstehen. Die Ionisationsrate ergibt sich gemäß [LL65] zu

$$r_{\text{tunnel}}(t) = 4 \frac{(2I_p)^{5/2}}{\mathcal{E}(t)} \exp\left(-\frac{2}{3} \frac{(2I_p)^{3/2}}{\mathcal{E}(t)}\right). \quad (2.11)$$

Andere Ionisationsraten im quasi-statischen Limit, wie die von KELDYSH [Kel65] oder AMMOSOV, DELONE und KRAINOV [ADK87], haben mit (2.11) den exponentiellen Faktor gemein, aber unterschiedliche Vorfaktoren.

Als Orientierungskriterium, ob man sich im adiabatischen oder nicht-

adiabatischen Intensitätsregime befindet, dient der *Keldysh-Parameter*

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}}, \quad (2.12)$$

mit der *ponderomotiven Energie* U_p , also der zyklusgemittelten Zitterenergie des Elektrons im Feld. U_p ist durch

$$U_p = \frac{\mathcal{E}^2}{4\omega^2} \propto \langle \mathbf{A}^2(t) \rangle_T \quad (2.13)$$

definiert und skaliert gemäß $U_p [\text{eV}] \hat{=} 0,09337 \cdot I [\text{W}/\text{cm}^2] \lambda^2 [\text{m}]$ mit der Laserintensität^{ii}. Für $\gamma > 1$ ist die Tunnelzeit des Elektrons größer als die Laserperiode, d. h. die quasi-statische Näherung ist unbrauchbar. In diesem Bereich findet MPI statt. Bei Intensitäten von $10^{14} \text{ W}/\text{cm}^2$ gilt für alle Edelgase $\gamma \approx 1$, man befindet sich also typischerweise in einem Zwischenregime. Yudin *et al.* haben in [YI01] eine allgemeine Ionisationsrate aufgestellt, die für beliebige Werte von γ gültig ist und das quasi-statische Limit als Grenzfall umfaßt.

Bei sehr starken Laserfeldern, also für $\gamma \gg 1$, verläßt man auch das Tunnelregime. Dies ist einsichtig, denn ab einer gewissen Feldstärke wird das atomare Potential soweit abgesenkt, daß sich das Elektron schon ohne Tunneln im Kontinuum befindet. Diese Unterdrückung der Schwelle findet bei Neon ab etwa $I = 10^{15} \text{ W}/\text{cm}^2$ statt. In diesem Regime steht kein analytischer Ausdruck mehr für r zur Verfügung und man ist auf numerische Abschätzungen angewiesen.

Die tatsächlich beobachtete Ausbeute an Elektronen ergibt sich aus der zeitlichen Integration der Ionisationsrate:

$$\Lambda(t) = 1 - \exp\left(-\int_{-\infty}^t r(\tau) d\tau\right). \quad (2.14)$$

In Abb. 2.3 ist für einen fs-Puls die Ionisationsrate nach Gl. (2.11) und die integrierte Gesamtionisationswahrscheinlichkeit als Funktion der Zeit gezeigt. Die *Sättigungsintensität*, also die Laserintensität, bei der ein bestimmter, fixer Anteil der Atome im Fokus ionisiert ist, hängt sowohl von r , als auch von der Laserpulsdauer Δt ab. Ein langer Puls kann auch bei niedrigen Intensitäten zur vollständigen Sättigung führen, wohingegen ein kurzer Puls, trotz höherer momentaner Ionisationsraten, ggf. nicht genügend Zeit hat, um eine signifikante Gesamtionisation zu erzielen. Umgekehrt heißt dies, daß möglichst kurze Pulse verwendet werden müssen, wenn man Ionisationsprozesse bei hohen Intensitäten untersuchen möchte: andernfalls ist das zu untersuchende Atom-

^{ii}Die Größenordnung von U_p für typische Parameter: mit $\lambda = 800 \text{ nm}$ und $I = 10^{14} \text{ W}/\text{cm}^2$ ist $U_p \approx 6 \text{ eV} \approx 4 \cdot \hbar\omega$.

Ensemble^{iii} möglicherweise bereits in der ansteigenden Pulsflanke vollständig ionisiert, bevor die Spitzenintensitäten überhaupt wirken können.

2.2.1.2. Freies Elektron im Laserfeld

Als zweiter Punkt im 3-Stufen-Modell bewegt sich das freie Elektron im Kontinuum und wird nur noch vom Laserfeld beschleunigt. Im rein klassischen Bild ergibt sich folgende Beschreibung: Das Elektron befindet sich nach der Ionisation zum Zeitpunkt t_0 an der Position $x(t_0) = 0$, mit dem Impuls $p(t_0) = 0$. Das Atom wird im Geiste der Starkfeldnäherung komplett vernachlässigt und die Bewegung des Elektrons erfolgt gemäß der Bewegungsgleichung

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} x(t) = -\mathcal{E}(t). \quad (2.15)$$

Beachte, daß in atomaren Einheiten $e = m_e = 1$ gilt. Das elektrische Feld eines Pulses ist allgemein durch $\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_0 h(t) \cos(\omega t + \varphi)$ gegeben, mit der auf 1 normalisierten Einhüllenden $h(t)$. Die Elektronentrajektorie ergibt sich aus der Summe einer durch $h(t)$ bestimmten, zeitabhängigen Schwingungsamplitude und einem konstanten Driftterm, der nur von t_0 abhängt. Wegen $\mathcal{E}(t) = -\partial \mathbf{A}(t)/\partial t$ ist in der Coulomb-Eichung^{iv} der kanonische Impuls $\mathbf{p}_{\text{kan}} = \dot{\mathbf{x}}(t) - \mathbf{A}(t)$ konstant. Der Moment der Geburt des Elektrons t_0 bestimmt also sowohl die Ionisationswahrscheinlichkeit (durch $|\mathcal{E}(t_0)|$), als auch die endgültige Driftgeschwindigkeit (durch $\mathbf{A}(t_0)$).

Erfolgt Rückstreuung zu einem späteren Zeitpunkt t_r , so wird diese gemäß klassischer Streutheorie unter Zuhilfenahme eines geeigneten Atompotentials in die Rechnung integriert. Im einfachsten Fall wird lediglich das Vorzeichen des Elektronenimpulses vor und nach der elastischen Streuung invertiert. Je nach beobachteten Prozeß kann natürlich auch Rekombination oder Stoßionisation erfolgen.

Berechnet man für ein monochromatisches \mathcal{E} -Feld die maximal mögliche kinetische Energie des rückkehrenden Elektrons, so findet man $E_{\text{kin,max}} = 3,17 U_p$, bei einem Startzeitpunkt von $\omega t_0 = 108^\circ$ und einem Rückkehrzeitpunkt von $\omega t_r = 341^\circ$.

2.3. Andere theoretische Ansätze

Obwohl das 2-Stufen-Modell die gängigste Methode zur Beschreibung von atomaren Phänomenen im hier untersuchten Intensitätsbereich darstellt, ist es

^{iii} Diese Aussage gilt quantenmechanisch natürlich auch für ein einzelnes Atom. Hier muß dann die Wahrscheinlichkeitsamplitude betrachtet werden, ob sich das Elektron im Grundzustand oder im Kontinuum befindet.

^{iv} Coulomb-Eichung: $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$. Diese ist konsistent mit der Anfangsbedingung $p(t_0) = 0$.

natürlich nicht die einzige. Je nach Fragestellung macht es auch Sinn, verschiedene Modelle und Approximationen zu kombinieren.

2.3.1. Keldysh-artige Theorien

Auch die Keldysh-artigen Näherungen leben von dem Umstand, daß die Wellenfunktion eines freien Elektrons im oszillierenden \mathcal{E} -Feld analytisch bekannt ist. Die Volkovfunktionen werden als Näherung für den Zustand des Elektrons nach seiner Wechselwirkung mit dem Laserfeld verwendet.

Die KFR-Theorie^{v} propagiert die Grundzustandsfunktion unter Vernachlässigung des Einflusses aller angeregten Zustände. Zur Berechnung der ATI-Spektren direkter Elektronen wird das Ergebnis auf die Volkovfunktionen projiziert. Für atomare Systeme mit sehr hoch liegenden angeregten Zuständen (z. B. Edelgase) und nicht zu hohen Laserintensitäten werden so gute Vorhersagen getroffen. Bei großen Feldstärken, speziell für $U_p \geq I_p$, wird die KFR-Theorie zusehens schlechter, da als Anfangszustand der vom Feld ungestörte Grundzustand verwendet wird.

2.3.2. Numerische Simulationen

Ist das physikalische Problem so übersichtlich, daß eine vollständige *ab initio* Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung möglich ist, so stimmen die damit numerisch erhaltenen Resultate bei sorgfältiger Wahl der Parameter gut mit dem Experiment überein. Im Idealfall erhält man das Ergebnis einer perfekten Messung, dafür aber keinerlei Einblick in das physikalische Geschehen. Noch dazu ist der rechnerische Aufwand immens, so daß diese Methode meist in Kombination mit obigen Näherungen verwendet wird. Von Interesse sind solche Berechnungen nur dann, wenn getestet werden soll, welche Effekte im Modell die dominierenden sind: Kann ein Parameter aus der Rechnung entfernt werden, ohne das Ergebnis nennenswert zu beeinflussen, so ist er offensichtlich von untergeordneter Bedeutung. Die Verifikation, ob ein Phänomen durch nur ein aktives Elektron beschrieben werden kann [Bau05], sei hier als ein Anwendungsbeispiel für diese Methode genannt.

2.4. Phänomene bei der Wechselwirkung von Atomen mit starken Laserfeldern

In dieser Arbeit werden, wie schon mehrfach angesprochen, durchweg Laserintensitäten zwischen 10^{13} W/cm² und einigen 10^{14} W/cm² verwendet. Entsprechend werden auch nur die in diesem Intensitätsbereich relevanten Phänomene

^{v}KFR: Keldysh-Faisal-Reiss. Für einen Übersichtsartikel siehe [Rei92].

beschrieben. Plasmen oder relativistische Effekte werden erst bei höheren Intensitäten interessant, reine MPI nur bei niedrigeren Intensitäten. Die drei hier relevanten Phänomene ATI, NSDI und HHG sind physikalisch eng verwandt und ergeben sich aus den verschiedenen Möglichkeiten, die dem beschleunigten Elektron nach Rückkehr zum Mutteratom offen stehen.

2.4.1. Photoelektronen weit jenseits der Ionisationsschwelle (ATI)

Im Gegensatz zu den beiden Phänomenen NSDI und HHG muß man bei der ATI zwei Möglichkeiten unterscheiden: direkte Elektronen und solche, die rückgestreut wurden. Berechnet man die zyklusgemittelte kinetische Energie, die ein Elektron gemäß dem Simple-Man's-Model für ein monochromatisches Feld erhalten kann, so ergibt sich $E_{\text{kin,max}} = 3U_p$. Hierin ist jedoch noch die Zitterbewegung enthalten, die das Elektron bei kurzen Pulsen^{vi} wieder an das Feld abgibt. Damit gilt $E_{\text{kin,max}}(\text{direkte Elektronen}) = 2U_p$. Setzt man die Rechnung für rückgestreute Elektronen fort, so erhält man $E_{\text{kin,max}}(\text{rückgestreute Elektronen}) \approx 10U_p$ [PBNW94]. Der zugehörige Ionisationszeitpunkt liegt bei $\omega t_0 = 105^\circ$ und der Rückstreuzeitpunkt bei $\omega t_r = 352^\circ$. Dieses energetische Maximum der ATI-Spektren, an denen sie endgültig steil abfallen, wird auch als *Cut-Off* bezeichnet.

Eine weitere, auffällige Eigenschaft der ATI-Spektren ist das Vorhandensein eines Plateaus [PNX⁺94], welches eindrucksvoll zeigt, daß ein störungstheoretischer Ansatz hier komplett unbrauchbar ist. Das 3-Stufen-Modell kann auch dieses Phänomen beschreiben, welches übrigens in ähnlicher Form auch bei der HHG auftritt.

Berechnet man ATI-Spektren (s. hierzu bspw. den Übersichtsartikel [BGK⁺02]), so ist darauf zu achten, daß für Energien diesseits der $10U_p$ immer mehrere verschiedene Ionisationszeitpunkte t_0 existieren. Entsprechend kommt es zur quantenmechanischen Interferenz zwischen den verschiedenen Elektronen, bzw. viel mehr zwischen den verschiedenen Teilamplituden der Wahrscheinlichkeitsverteilung des Elektrons mit sich selbst. Die Amplitude der jeweiligen Beiträge ist durch die Ionisationswahrscheinlichkeit $r(t_0)$ gegeben, die Phase durch

$$\theta = -\frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^{\infty} p^2(\tau)/2m_e \, d\tau. \quad (2.16)$$

Hierbei ist p der klassische Elektronenimpuls und m_e die Elektronenmasse.

Die starken Laserfelder führen durch den dynamischen Stark-Effekt zu einer Verschiebung der atomaren Energieniveaus und damit verbunden zu einer Beeinflussung des Ionisationsprozesses, was insbesondere bei der Be-

^{vi}Die Grenze für »kurze Pulse« liegt hier etwa bei 1 ps. In dieser Arbeit wird mit Femtosekundenpulsen gearbeitet, also mit weit kürzeren Pulsen.

trachtung von Zuständen nahe der Ionisationsgrenze klar wird. Das Licht hebt die Ionisationsschwelle um die ponderomotive Energie U_p an, so daß es zu einer Untertdrückung der niedrigsten ATI-Maxima kommen kann (*channel closing*) [KKV81, KKV83]. Ist der Puls länger als einige ps, so wird das Elektron beim Verlassen des Laserprofils mit der ponderomotiven Kraft $\mathbf{F}_p = -\nabla U_p$ beschleunigt, so daß es insgesamt zu keiner Beeinflussung der Position der ATI-Maxima kommt. Bei der Verwendung kurzer Laserpulse verliert das Elektron seine Oszillationsenergie von U_p an das Laserfeld, und man beobachtet entsprechend eine Rotverschiebung der Spektren um diesen Betrag [AKL⁺87, LGJ⁺87, FBM⁺87]. Der beschriebene Effekt der Niveauverschiebung ist nicht nur für schwach gebundene Zustände von Interesse. In Abhängigkeit der Polarisierbarkeit der Zustände und dem Vorhandensein resonanter Zwischenzustände, werden auch stärker gebundene Zustände (wie der Grundzustand) durch die Laserstrahlung verschoben: bei Edelgasen meist schwächer, bei Alkaliatomen oft stärker. Ist die Verschiebung des Grundzustandes größer als die der Ionisationsschwelle, kann sogar eine Blauverschiebung der Spektren beobachtet werden [NKW⁺92].

Ein weiteres Phänomen sind Freeman-Resonanzen [FBM⁺87]. Während des Laserpulses ändert sich die Lichtintensität von Null bis zur Maximalintensität; entsprechend dynamisch verschieben sich die atomaren Energieniveaus. Erreichen hierbei bestimmte Zustände Resonanz, so dominieren sie die beobachteten ATI-Spektren, und es kommt zu starken (oft auch dominierenden) Beiträgen zwischen den eigentlichen ATI-Maxima. Bei zirkular polarisiertem Licht lassen die Auswahlregeln zumeist keine Resonanzen zu. Daher sind die ATI-Spektren dort für $U_p > \hbar\omega$ zumeist strukturlos.

2.4.1.1. Makroskopische Effekte: Volumeneffekt

Obwohl ATI ein Effekt einzelner Atome ist und es keine kohärente Superposition der emittierten Photoelektronen gibt, werden im Experiment doch immer Elektronen verschiedener Atome beobachtet. Diese Atome unterscheiden sich vor allem durch ihre Position im Laserfokus oder der Radialposition im Laserstrahl und somit auch durch die auf sie einwirkende maximale Intensität I_{\max} . Zusammen mit der oben genannten, intensitätsabhängigen Rotverschiebung der Spektren, kann es durch die unvermeidbare Mittelung über alle Atome zu einem mehr oder minder starken Auswaschen der Strukturen der ATI-Maxima kommen.

2.4.1.2. ATI in Alkaliatomen

Wegen des großen Ionisationspotentials von Edelgasen liegt deren Sättigungsintensität sehr hoch. Somit ist es relativ leicht, den Atomen die Spitzenintensität eines Laserpulses auch tatsächlich zuzuführen. Bei Atomen mit einer kleineren Ionisationsenergie, wie dies z. B. bei den Alkaliatomen der Fall ist,

ergibt sich aus dem Sättigungsproblem die Schwierigkeit, daß das Atom bereits in der steigenden Flanke des Pulses ionisiert und es somit nicht gelingt, die im Laserpuls vorhandene Spitzenintensität auszunutzen. Systematische Untersuchungen von Alkaliatomen mit intensiven Laserpulsen gibt es erstaunlich wenige. Dies mag zum einem an dem genannten Sättigungsproblem liegen, zum anderen ist die experimentelle Arbeit mit den reaktiven Alkalimetallen allgemein kritischer und aufwendiger als die mit inerten Gasen.

Die ersten ATI-Spektren von Alkaliatomen wurden mit ps-Lasern an Cäsium aufgenommen [PFA⁺84]. Die Resultate wurden von der Starkverschiebung eines quasioresonanten Niveaus beeinflußt. Eine störungstheoretische Analyse liefert eine gute Beschreibung der Daten, die allerdings lediglich das erste ATI-Maximum zeigten. Nicklich *et al.* haben in Untersuchungen mit 70 fs-Pulsen in Cäsium ATI-Peaks bis zur 7. Ordnung beobachtet, sowie eine Substruktur, die auf Rabi-Kopplungen [Rab37] im D-Übergang zurückgeführt werden konnte [NKW⁺92, Nic92]. Weitere Untersuchungen mit Femtosekundenlasern wurden von ASSION *et al.* an Na₂-Molekülen durchgeführt, bei denen die beobachtete Struktur der ATI-Maxima durch Molekülvibrationen dominiert wurde [ABH⁺97].

Weitere Untersuchungen mit langwelligen Pulsen wurde von DIMAURO *et al.* an Kalium und Rubidium durchgeführt [SML⁺99, GSK⁺00]. Hier wurden allerdings keine ATI-Elektronen, sondern hohe Harmonische beobachtet. Ähnliche Untersuchungen an ATI-Spektren von Cäsium wurden von DRUTEN *et al.* mit zirkular polarisiertem Licht ausgeführt [vTM95]. Gemeinsame Motivation dieser Experimente ist das Skalierungsverhalten der nichtlinearen Effekte: Verhält sich ein Atom mit niedriger Ionisationsschwelle bei Bestrahlung mit langwelligem Laserlicht ähnlich wie ein Atom mit einer hohen Ionisationsschwelle bei Bestrahlung mit kurzwelligerem Laserlicht? Dies kann prinzipiell natürlich lediglich bedingt der Fall sein, denn das Ionisationsverhalten wird vom Keldysh-Parameter $\gamma \propto U_p^{-1/2}$ bestimmt, während die Dynamik der ionisierten Elektronen im Kontinuum von der ponderomotiven Energie U_p selbst abhängt. Zudem ergeben sich mit verschiedenen Lichtfrequenzen unterschiedliche Zeitkonstanten der Prozesse: Eine langsamere Dynamik der Prozesse führt z. B. zu einer stärkeren Verbreiterung des Elektronenwellenpaketes und somit zu einer geringeren Sensitivität gegen die Effekte von zirkularer Polarisation. Es ist aber unschwer einsichtig, daß aus solchen Untersuchungen und Vergleichen ein tiefes Verständnis der zugrundeliegenden Prozesse zu gewinnen ist.

Eine andere Motivation, speziell für die Untersuchung von Alkaliatomen mit Femtosekundenpulsen, ergibt sich aus den stark gekoppelten Niveaus der Atome. Eine Verschiebung des Grundzustandes $|g\rangle$ aufgrund des dynamischen Stark-Effekts kann, wie weiter oben bereits gesagt, die üblicherweise beobachtete intensitätsabhängige Rotverschiebung der Spektren in eine Blauverschiebung verwandeln. Ein weiterer interessanter Effekt ist der folgende: Liegt ein resonanter Zwischenzustand $|z\rangle$ vor, so kann man das Atom vereinfachend

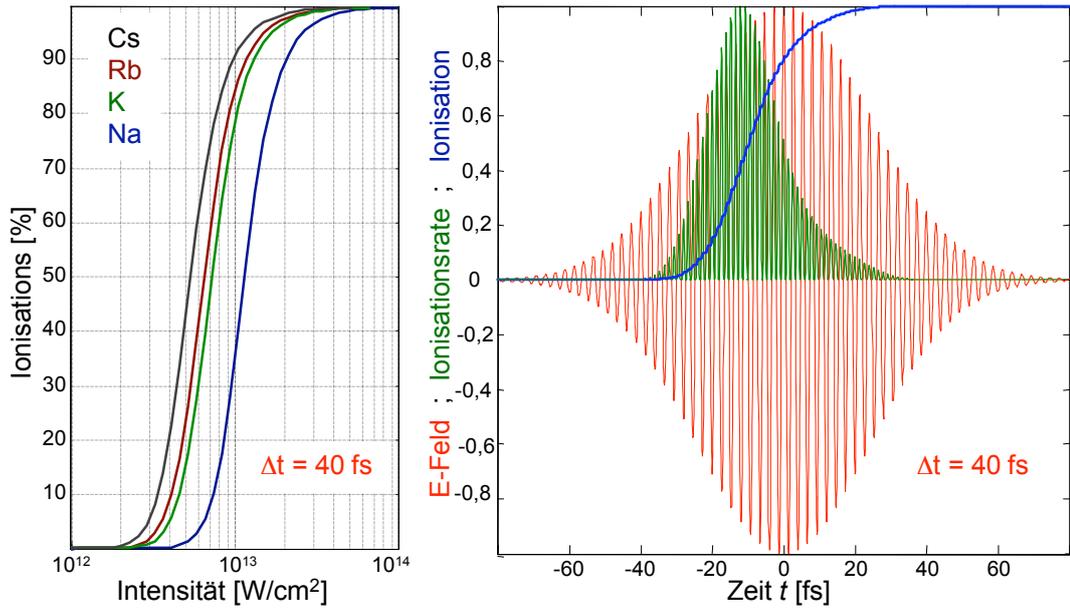


Abb. 2.3.: *Links*: Ionisationswahrscheinlichkeit verschiedener Alkaliatome als Funktion der Laserintensität bei der Verwendung von 40 fs-Pulsen. *Rechts*: Ionisationsverhalten gemäß der ADK-Theorie. Gezeigt sind das \mathcal{E} -Feld (*rot*) mit den Parametern $\lambda = 800$ nm, $\Delta t = 40$ fs und $I = 10^{13}$ W/cm², die momentane Ionisationsrate (*grün*) und die Gesamtionisation (*blau*) als Funktion der Zeit. Das angenommene Ionisationspotential beträgt 4,5 eV, womit sich rechnerisch ein Keldysh-Parameter $\gamma = 1,94$ ergibt.

im *Dressed-State*-Bild [CTR77a, CTR77b] betrachten und erwartet eine Aufspaltung von $|g\rangle$ und $|z\rangle$, und zwar jeweils um die Rabi-Frequenz Ω_R . Wegen $\Omega_R = \mu_{gz}\mathcal{E}_0/\hbar \propto \sqrt{I}$ ist damit eine intensitätsabhängige Aufspaltung der beobachteten ATI-Maxima zu erwarten. Das Übergangsmatrixelement μ_{gz} liegt für die dominante D-Linie bei allen Alkalimetallen bei etwa 3 Debye $\approx 10^{-29}$ Cm [Ste03]. Mit der Abschätzung

$$\Omega_R[\text{MHz}] \hat{=} 43,7 \cdot \mu_{gz} [\text{D}] \sqrt{I [\text{W}/\text{cm}^2]} \quad (2.17)$$

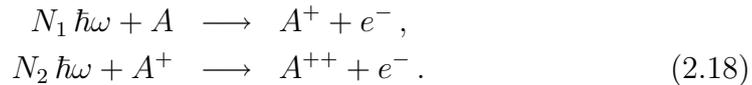
ergibt sich bei einer Laserintensität von $I = 10^{13}$ W/cm² eine Rabi-Frequenz und somit auch eine Aufspaltung der ATI-Peaks, von $\Omega_R = 4 \cdot 10^{14}$ Hz $\hat{=} 1,7$ eV [TMW03]. Zum Vergleich: die Photonenenergie eines typischen Ti:Saphir-Lasers liegt bei $\hbar\omega = 1,55$ eV.

Wegen des bereits angesprochenen Problems der Sättigung ist es jedoch nicht einfach, eine solch hohe Intensität effektiv einzusetzen. Wichtig sind hierzu sehr kurze Laserpulse. Abb. 2.3 zeigt zwei Abschätzungen, die zeigen, daß Pulsdauern von etwa 40 fs ausreichend sind: Mittels der Tunnelrate aus

Gl. 2.11 wurde die Ionisation für verschiedene Alkalimetalle simuliert. Es zeigt sich, daß die Sättigungsintensität bei der Verwendung eines 40 fs-Pulses bei etwa $I_{\text{satt}} \approx 10^{13} \text{ W/cm}^2$ liegt. Im rechten Teil der Abbildung ist die Ionisation im Detail gezeigt, wie sie für einen Puls mit $I \approx I_{\text{satt}}$ abläuft. Das angesetzte Ionisationspotential entspricht mit $I_p = 4,5 \text{ eV}$ einem ungefähren Mittelwert der Alkalimetalle. Es ist anzumerken, daß die Resultate dieser Rechnung mit Vorsicht zu genießen sind: Einmal ist die Annahme der Tunnelionisation unter den gegebenen Parametern kritisch. Zum anderen werden Resonanzeffekte und Niveaushiftungen in den Alkaliatomen komplett vernachlässigt. Die tatsächliche Sättigungsintensität wird folglich merklich niedriger liegen, sollte sich aber in einer ähnlichen Größenordnung bewegen, wie sie aus der Rechnung folgt.

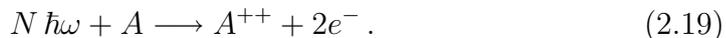
2.4.2. Nicht-sequentielle Doppelionisation (NSDI)

Die Doppelionisation von Atomen wurde erstmals bei Alkaliatomen beobachtet [ADZS79], später auch bei anderen Elementen. Die für diese spezielle Form der MPI benötigten Intensitäten liegen jenseits der 10^{13} W/cm^2 . Das naheliegendste Modell hierzu ist ein sequentieller Prozeß der Art



Für die Rate der einfach geladenen Ionen stimmen die Messungen ausgezeichnet mit entsprechenden ADK-Berechnungen überein. Die Rate der doppelt geladenen Ionen fällt bei niedrigen Intensitäten jedoch um mehrere Größenordnungen größer als erwartet aus [LLMM83]. Lediglich im Intensitätsbereich, in dem die einfache Ionisation bereits gesättigt ist, läßt sich die Doppelionisation sequentiell beschreiben.

Das Versagen der theoretischen Vorhersagen suggeriert, daß der Doppelionisationsprozeß entgegen (2.18) nicht-sequentiell stattfindet, also beide Elektronen gleichzeitig freigesetzt werden:



Die nicht-sequentielle Doppelionisation (NSDI) wurde zuerst für Xe beobachtet [LLMM83], später auch für He [FBCK92, WMY⁺93, WSD⁺94] und andere Edelgase [FBCK94, ATC⁺95] und schließlich sogar für einige Moleküle [TLC97, CH98, GLNG98]. Für den physikalischen Mechanismus, der hinter der NSDI steht, wurden mehrere Vorschläge entwickelt:

- *Kollektives Tunneln* [EDM⁺00]: Beide Elektronen tunneln gemeinsam durch die Coulomb-Barriere, welche vom Laserfeld abgesenkt wird.
- *»Shake-Off«* [FBCK92]: Bei der ersten Ionisation wird das Atom schnell

und stark angeregt, so daß die verbleibenden Elektronen nicht adiabatisch auf ihre neuen Eigenzustände fallen können. Als Folge hiervon springen einige von ihnen auf angeregte Zustände oder werden direkt ins Kontinuum »abgeschüttelt«.

- *Rückstreuung* [Kuc87, SYDK93, Cor93]: Das 3-Stufen-Modell gemäß Abs. 2.2.1. Nach einfacher Ionisation stößt das rückkehrende Elektron, vom Laserfeld beschleunigt, inelastisch mit dem Mutterion zusammen und führt zur Freisetzung des zweiten Elektrons.

Alle der genannten Modelle führen unter geeigneten Bedingungen zur Doppelionisation. Der Shake-Off ist von Interesse, wenn sehr hochenergetische Photonen ($\hbar\omega \gg I_p$) absorbiert werden; das kollektive Tunneln findet dominant statt, wenn ein sehr starkes statisches oder quasi-statisches Feld anliegt, oder bei Halbzyklenpulsen, die zur Rückstreuung zu kurz sind.

Aus den integralen Messungen der Ionisationsrate alleine ist der NSDI-Prozeß zunächst nicht zu identifizieren. Verschiedene Messungen mit elliptischer Polarisierung zeigen, daß bei zirkularer Laserpolarisation die typischen NSDI-Merkmale verschwinden, was in Einklang mit dem Rückstreuansatz ist [FBCK94]. Ebenso spricht die Wellenlängenabhängigkeit der NSDI bei Ar für den Rückstreuansatz [LTC98].

Bei strenger Betrachtung des 3-Stufen-Modells sollte man einen scharfen Schwellenwert für die NSDI erwarten, wenn die Intensität so klein wird, daß die maximale Energie des rückstoßenden Elektrons kleiner wird als das zweite Ionisationspotential: $3,17U_p < I_p^+$. Tatsächlich wird eine solche Schwelle aber nicht beobachtet [SLW⁺98]. Kapitel 4.1.2 geht dieser Frage genauer nach und zeigt, daß mit einer einfachen Erweiterung des 3-Stufen-Modells auch unter dem beschriebenen Schwellenwert noch NSDI nach dem Rückstreuprinzip erfolgen kann.

Damit kann man sagen, daß bei den in dieser Arbeit verwendeten Intensitäten der wesentliche Mechanismus der NSDI, die Ionisation durch das rückkehrende Elektron ist. Für hinreichend große Energie des rückkehrenden Elektrons erfolgt direkte Stoßionisation. Bei niedrigeren Energien kann der Ionisationsprozeß auch durch Stoßanregung eines gebundenen Elektrons erfolgen, welches im Folgenden feldionisiert wird. Alternativ ist auch Elektroneneinfang und kollektive Feldionisation zweier von der gewonnenen Energie angeregten Elektronen möglich.

2.4.3. Erzeugung hoher Harmonischer (HHG)

Rekombiniert das rückkehrende Elektron mit dem Mutteratom, so kann ein Photon emittiert werden, für dessen Energie $E = \hbar\omega = E_{\text{kin}}(e^-) + I_p$ gilt. Mit der maximalen kinetischen Energie des rückkehrenden Elektrons von $3,17U_p$

erwartet man den *Cut-Off* der sogenannten *Hohen Harmonischen* gerade bei $3,17U_p + I_p$. Dies entspricht auch den Beobachtungen [KSK92, LB93].

Wegen der Inversionssymmetrie in Gasen beobachtet man (für nicht zu kurze Pulse) nur Harmonische bei ungeradzahligen Vielfachen der Eingangslaserfrequenz ω [GMM⁺77, RSE78]. Ähnlich wie bei ATI folgt der Intensitätsverlauf der ersten paar Maxima etwa einer exponentiellen Abnahme, daran schließt sich aber ein sich über viele Ordnungen erstreckender Bereich an, über den die Intensität aufeinanderfolgender Maxima praktisch unverändert bleibt [FLL⁺88, LLF⁺89]. Dieses Plateau wird, genau wie bei ATI, ebenfalls gut durch das Simple-Man's-Model beschrieben.

Für Energien diesseits des Cut-Off gibt es pro Laserzyklus jeweils genau 2 Ionisationszeiten und entsprechend 2 Elektronentrajektorien, die zur gleichen Energie führen. Diese werden entsprechend ihrer unterschiedlichen *Reisezeit* $t_R \equiv t_r - t_0$ als lange und kurze Trajektorie bezeichnet. Interferieren diese beiden miteinander, so spricht man, wegen der Analogie zur mechanischen Projekttilbewegung, von ballistischer Interferenz. Grundsätzlich können alle Photonen mit der gleichen Energie interferieren. Um die kohärente Superposition hiervon berechnen zu können, benötigt man die Phase der Photonen. Diese ergibt sich aus nicht-klassischen Überlegungen gemäß [LBI⁺94, LSL95] zu

$$\theta = -\frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^{t_r} (p^2(\tau)/2m_e + I_p) d\tau + q\omega t_r. \quad (2.20)$$

Hierbei ist p der klassische Elektronenimpuls, m_e die Elektronenmasse, I_p das Ionisationspotential und $q \in \mathbb{R}^+$ die Ordnung der Harmonischenstrahlung.

Die ausgesandte, hochfrequente Strahlung eines einzelnen Atoms ist zunächst nicht gerichtet. Der Grund für die tatsächlich aber sehr hohe Konvergenz der Harmonischenstrahlung liegt in Phasenanpassungseffekte zwischen Photonen verschiedener Atome begründet.

2.4.3.1. Makroskopische Effekte: Phasenanpassung

Da bei allen Experimenten eine große Anzahl von Atomen zusammenwirken, wird das beobachtete HHG-Spektrum davon abhängen, wie die oben beschriebenen Elementarprozesse interagieren. Da die Atomwolke ungeordnet ist, erwartet man zunächst keine konstruktive Interferenz. Lediglich in Richtung des Laserstrahls selbst kann es durch Phasenanpassung zur Emission von intensiver Strahlung kommen. Die wesentlichen Beiträge der Phase der Harmonischen sind:

- Die atomare Phase θ_{atom} gemäß Gl. (2.20).
- Die geometrische Phase, die sich aus dem Phasenverlauf im Fokus eines

Gaußschen Strahles ergibt. Für die Fundamentalwelle gilt [Sve98]

$$\theta_{\text{geom}}(r, z) = -\arctan\left(\frac{z}{z_{\text{R}}}\right) + \frac{\pi r^2}{\lambda R(z)}, \quad (2.21)$$

mit den geometrischen Koordinaten r und z , der Rayleigh-Länge z_{R} und dem Radius der Krümmung des Strahls $R(z)$ (s. a. Abs. 2.5). Für die q -te Harmonische gilt $\lambda_q = q \lambda$, entsprechend ist die geometrische Phase dann $\theta_{\text{geom}, q} = q \theta_{\text{geom}}$.

- Die Phase aufgrund von Dispersion durch neutrale Atome und Plasma. Für große Elektronendichten N_e gilt

$$\theta_{\text{disp}}(r, z) = \frac{q\lambda e^2}{4\pi\epsilon_0 m_e c^2} N_e(r, z) z. \quad (2.22)$$

Effektive Harmonischenstrahlung kann nur entstehen, wenn über ein ausgedehntes Volumen Phasenanpassung stattfindet. In anderen Worten, die algebraische Summe aus $\theta_{\text{atom}} + q \theta_{\text{geom}} + \theta_{\text{disp}}$ sollte konstant sein.

2.5. Gaußsche Optik

Die zur Untersuchung obiger Effekte benötigten \mathcal{E} -Feldstärken lassen sich selbst mit modernen Lasern nur durch mehr oder minder scharfe Fokussierung erzeugen. Darum sollen hier noch einige wesentliche Stichpunkte aus dem Bereich der Optik Erwähnung finden. Zudem ergibt sich so eine natürliche Überleitung zu Kapitel 3.

Wegen der Welleneigenschaften des Lichts gibt es Beugungs- und Divergenzeffekte, die der Fokussierung entgegenwirken. Absolute Untergrenze der Lokalisierung ist die Wellenlänge selbst: Eine solche Minimalfokussierung auf das Beugungslimit kann mit räumlicher Filterung (für ein homogenes Intensitätsprofil) und adaptiver Optik (für eine flache Wellenfront) erreicht werden [CBM⁺98, BRP⁺04], ist aber im normalen Laboralltag unrealistisch. Als Größe für die Güte der Fokussierbarkeit eines Lasers wird der M^2 -Wert herangezogen, oft auch als Strehl-Verhältnis bezeichnet. Die selbsterklärende Definition lautet

$$M^2 \equiv \frac{\text{FWHM (tatsächlicher Fokus)}}{\text{FWHM (idealer gaußscher Fokus)}}. \quad (2.23)$$

Der Wert von M^2 kann mit einfachen Mitteln gemessen werden [Rou99], ergibt aber eben nur eine einzelne Zahl. Zur Diagnose, wo tatsächlich die Unregelmäßigkeiten in der Wellenfront liegen, benötigt man einen Shack-Hartmann-Wellenfrontdetektor, der mittels eines Mikrolinsenarrays diese unmittelbar vermisst.

Wie bestimmt sich nun der minimale Durchmesser eines idealen Fokus? Aus den Maxwell-Gleichungen folgt die Wellengleichung

$$\left(\Delta - \frac{1}{c}\right) \mathcal{E}(x, y, z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}(x, y, z, t), \quad (2.24)$$

mit der Polarisation \mathbf{P} . Für einen in z -Richtung laufenden, linear polarisierten Strahl der Form

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}(x, y, z, t) = \frac{1}{2} \tilde{h}(x, y, z) \tilde{\mathcal{E}}(t, z) e^{i(\omega t - \frac{c}{\lambda} z)} + \text{k. k.} \quad (2.25)$$

vereinfacht sich diese in der paraxialen Näherung ($x, y \ll z$), nach Abspaltung des zeitabhängigen Anteils, zu

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} - 2ik \frac{\partial}{\partial z}\right) \tilde{h}(x, y, z) = 0. \quad (2.26)$$

Die Lösung dieser Gleichung sind Strahlen mit einem Radialprofil der Art $\tilde{h}(x, y, z) \propto \exp[-(x^2 + y^2)/w^2(z)]$, welche daher auch als *Gaußsche Strahlen* bezeichnet werden. Nimmt man nun als Ausgangspunkt für $z = 0$ einen ebenen Strahl dieser Art, mit einem $1/e$ -Radius $w(0) = w_0$, flacher Phasenfront (Krümmungsradius der Phasenfront $R(0) = \infty$) und verschwindender Phase $\theta(0) = 0$ an, so ergibt sich [DR96]

$$R(z) = z + z_R^2/z \quad (2.27)$$

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + z^2/z_R^2} \quad (2.28)$$

$$\theta(z) = \arctan(z/z_R), \quad (2.29)$$

mit der *Rayleigh-Länge*

$$z_R = n \pi w_0^2 / \lambda. \quad (2.30)$$

Der Strahl divergiert also wie hier beschrieben. Der so hergeleitete Phasenverlauf (2.29) ist auch als *Gouy-Phase* bekannt [Gou90]. Die doppelte Rayleigh-Länge wird als *konfokaler Parameter* bezeichnet, und beschreibt den Bereich des Fokus $-z_R \leq z \leq z_R$, für dessen Radius noch gilt $w_0 \leq w \leq \sqrt{2} w_0$.

Umgekehrt läßt sich leicht aus dem Ausdruck für den Krümmungsradius $R(z)$ bestimmen, auf welche Größe d sich ein planer, gaußscher Strahl vom Durchmesser D mit einer Optik der Brennweite f fokussieren läßt:

$$d = \frac{2\lambda f}{D}. \quad (2.31)$$

Häufig Verwendung findet der Begriff der f -Zahl $f_{\#} \equiv f/D$. Für Ti:Saphir-Laser gilt wegen $\lambda = 800 \text{ nm}$ der praktische Zusammenhang $d [\mu\text{m}] \hat{\approx} f_{\#}$.

3. Ultrakurze Laserpulse bei hoher Repetitionsrate

Was sind »ultrakurze« Pulse? Wie werden sie erzeugt, was sind prinzipielle Grenzen des Machbaren? Für welche Anwendungen ist eine hohe Repetitionsrate wichtiger als die Pulsenergie, welche Besonderheiten gibt es zu beachten?

 TYPISCHE KURZPULSLASER arbeiten mit Repetitionsraten von 10 Hz bis 5 kHz und erreichen Spitzenleistungen im Terawatt- oder sogar Petawatt-Bereich. Für Hochenergie- und Plasmaphysik sind diese Intensitäten zwingend notwendig; die in unserer Arbeitsgruppe untersuchten Phänomene benötigen lediglich Energiedichten in der Größenordnung von 10^{14} W/cm², welche bei entsprechend starker Fokussierung bereits mit Pulsenergien von wenigen μ J zu erreichen sind. Der Nachteil hiervon besteht in einer kurzen Ausdehnung des Fokus, also einer kleinen Rayleigh-Länge z_R . Dies ist kritisch für Phänomene, die eine makroskopische Phasen Anpassung im Fokus benötigen [WN69], wie beispielsweise die Erzeugung hoher Harmonischer; andererseits konnte selbst diese in unserer Gruppe unter solchen Bedingungen demonstriert werden [LSS⁺03]. Für Ein-Atom-Prozesse wie ATI (Abs. 4.2.2) oder NSDI (Abs. 4.1) spielt z_R keine Rolle. Daher wurde bei der Auswahl des Lasersystems das Augenmerk nicht auf eine hohe Pulsenergie gelegt, sondern auf eine hohe Repetitionsrate. Der Vorteil hiervon liegt bei der Messung von Photoelektronenspektren auf der Hand: Die Anzahl der pro Schuß nachweisbaren Elektronen ist durch die Zeitauflösung der Detektion prinzipiell limitiert. Um dennoch eine gute Statistik zu erhalten, benötigt es vieler wiederholter Einzelmessungen, typischerweise also mehrerer Millionen Laserschüsse – eine Erhöhung der Repetitionsrate um zwei Größenordnungen vermindert die Meßzeit um ebensoviel. Zudem werden störende Raumladungseffekte minimiert.

Das in der Gruppe verwendete Lasersystem ist ein Verstärkersystem, welches nicht auf der klassischen CPA^{i} beruht, sondern ohne externen Pulsstreckler auskommt. Die Repetitionsrate liegt bei 100 kHz bei einer Pulslänge von 35 fs und einer Pulsenergie von 7 μ J mit einer Zentralwellenlänge von

^{i}CPA: Chirped Pulse Amplification [SM85].

800 nm. Mit den in Abs. 3.2 beschriebenen Erweiterungen wurden bei gleicher Repetitionsrate sogar sub-10 fs Pulse von fast 4 μJ erreicht.

Das Lasersystem basiert auf einem kommerziellen Verstärker, wurde aber in vielen Punkten stark modifiziert, insbesondere wurde die auf Gittern beruhende schwer handhabbare Strecker-/Kompressor-Kombination durch einen speziellen Prismenkompressor ersetzt, welcher einen höheren Energiedurchsatz und eine bessere Kompensation des Chirps^{ii} in höheren Ordnungen zulässt. Zur weiteren Optimierung der Pulskompression wurde ein adaptiv arbeitender Pulsformer in Form eines *Spatial Light Modulators* (SLM) in einem 4f-Aufbau ergänzt.

Zu Beginn dieser Arbeit war das Lasersystem bereits seit geraumer Zeit im Einsatz; in [LPG⁺02] wird es ausgiebig vorgestellt, Abschnitt 3.1 faßt dies noch einmal zusammen. Im Verlauf der Arbeit wurde der Laser umfassend umgebaut, in Abschnitt 3.2 werden die neuen Erweiterungen beschrieben. Ziel der Umbauten war es, die Pulslänge auf unter 10 fs zu senken, um dann langfristig auf eine Stabilisierung der absoluten Phase (Abs. 5.1) hinzuarbeiten. Nur bei solch extrem kurzen Pulsen ist die absolute Phase überhaupt von Relevanz (vgl. Abb. 5.1). Aus historischen Gründen werden jedoch bereits alle Pulse mit einer Länge^{iii} von unter 100 fs als *Femtosekundenpulse* oder *ultrakurze Pulse* bezeichnet.

3.1. Bereits bestehendes Lasersystem

Abbildung 3.1 gibt eine Übersicht über das gesamte Lasersystem. Zwei Dauerstrich-Pumplaser pumpen den Oszillator und den regenerativen Verstärker. Zur Pulskompression dient ein Proctor-Wise-Prismenkompressor und ein Phasenmodulator, welcher nahezu jeden beliebigen Chirp kompensieren kann. Einen dedizierten Strecker gibt es nicht, die große Dispersion innerhalb des Verstärkers macht diesen überflüssig.

Die Spezifikationen der generierten, nahezu fouriertransformlimitierten Pulse fassen sich wie folgt zusammen:

- Repetitionsrate: 100 kHz,
- Pulslänge: $\Delta\tau = 35$ fs,
- Pulsenergie: $E = 7$ μJ ,
- Bandbreite: $\Delta\lambda = 35$ nm,

^{ii}Chirp: engl. für »Zwitschern« oder »Zirpen«. Ein Signal ist gechirpt, wenn nicht alle Spektralanteile gleichzeitig, sondern nacheinander auftreten. Normale Dispersion erzeugt einen positiven Chirp (die langwelligen Spektralanteile kommen zeitlich zuerst).

^{iii}Die Länge eines Laserpulses bezeichnet immer die zeitliche Halbwertsbreite (FWHM) der Einhüllenden der Intensität $I = \mathcal{E}^2$.

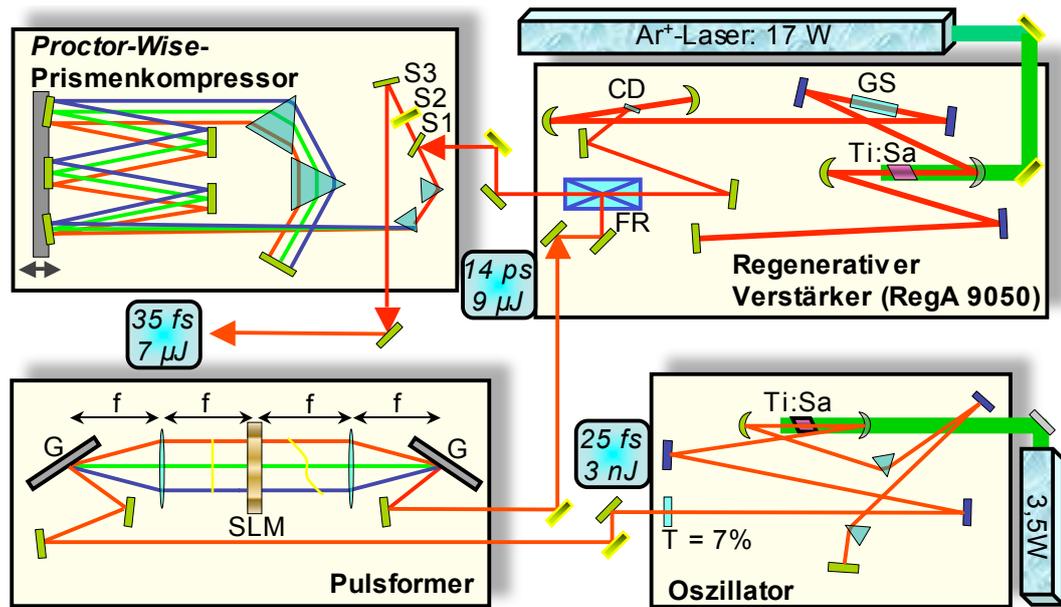


Abb. 3.1.: Femtosekunden-Lasersystem, bestehend aus *Oszillator*, *regenerativem Verstärker*, *Prismen-* und *4f-Kompressor*. Gechirpte Spiegel im Oszillator und Verstärker sind blau gekennzeichnet, für die Strahlstabilisierungen auf Piezomotoren gehaltete Spiegel haben einen grauen Farbverlauf und gelben Rand.

- Zentralwellenlänge: $\lambda = 800 \text{ nm}$,
- Strahlprofil: gaußförmig, $d \approx 7 \text{ mm}$.

Die einzelnen Komponenten des Lasersystems werden in den folgenden Unterabschnitten genauer beschrieben.

3.1.1. Oszillator

Der Femtosekunden-Oszillator ist eine Eigenkonstruktion [Kas97], die seiner Zeit zur Spitzentechnologie zählte. Mittlerweile sind Laser mit vergleichbaren oder sogar besseren Charakteristika bereits kommerziell erhältlich. Ein etwa 2 mm starker, titandotierter Saphirkristall wird durch einen diodengepumpten, frequenzverdoppelten Nd : YVO₄-Laser (Abs. 3.1.5.1) angeregt. Der knapp 2 m lange Kerrlinsen-modengekoppelte Laserresonator [SKS91] (Repetitionsrate 76 MHz) ist mehrfach gefaltet. Zur Kompensation der resonatorinternen Dispersion sind ein Quarzglas-Prismenpaar [FMG84] und drei mit einer speziellen dielektrischen Beschichtung versehene (*gechirpte*) Spiegel [SFSK94] eingebaut. Bei einer Pumpleistung von 3,5 W werden routinemäßig 40 nm brei-

te Spektren erzeugt, dies entspricht einer theoretischen Pulsdauer von 17 fs^{iv}. Im Prinzip eignet sich der Aufbau zur Erzeugung von Pulsdauern bis in den Bereich von 10 fs. Da der Verstärker von derart kurzen Pulsen nicht profitiert, wird von dieser Möglichkeit kein Gebrauch gemacht. Die mittlere Leistung des Femtosekunden-Laseroszillators beträgt etwa 230 mW. Alle optischen Grenzflächen der Transmissionsoptiken stehen im Brewsterwinkel, so daß eine horizontal-lineare Polarisierung erreicht wird.

3.1.2. Regenerativer Verstärker: Coherent RegA 9050

Im Gegensatz zu niedrig repetitiven Systemen spielen in unserer Anlage Probleme durch zu hohe Intensität im Verstärker eine untergeordnete Rolle. Es ist insbesondere nicht erforderlich, die Pulse vor der Verstärkung eigens zu strecken. Stattdessen führt die hohe Materialdispersion zu einer hinreichenden Pulsverlängerung. Der Femtosekunden-Laserverstärker basiert auf einem kommerziellen Gerät (RegA 9050, Coherent [Nor92]). Als gütegeschalteter, regenerativer Verstärker ist er im Prinzip ein Laserresonator. In diesen wird mit Hilfe eines akustooptischen Schalters^{v} ein Puls aus dem Pulszug des Oszillators eingekoppelt, während gleichzeitig der Güteschalter – ebenfalls ein akustooptischer Schalter – geöffnet wird. Bei jedem Umlauf im Verstärkerresonator wird dieser Puls in einem wassergekühlten Ti:Saphir-Kristall verstärkt und nach einer vorgegebenen Anzahl von Umläufen (typischerweise 18) wieder ausgekoppelt. Die Güteschaltung ist notwendig, um eigenständiges Lasen^{vi} des kontinuierlich gepumpten (Abs. 3.1.5.2) Verstärkers zu unterbinden. In Verbindung mit der Lebensdauer der Laserniveaus im Titan:Saphir von etwa 3 μ s lassen sich so effektiv Repetitionsraten von bis zu 250 kHz verwirklichen. Die Pulsenergie läßt sich durch Reduktion der Repetitionsrate auf fast 9 μ J optimieren, wobei die Pulsenergie bei Repetitionsraten kleiner als 100 kHz kaum mehr ansteigt. Aus diesem Grund ist für uns eine Repetitionsrate von 100 kHz Standard geworden. Zur Feineinstellung der Dispersion dritter Ordnung (vgl. Abs. 3.1.4) befinden sich im Resonator zudem drei spezielle gechrpte Spiegel^{vii}. Die spektrale Bandbreite nach dem Verstärker beträgt etwa 36 nm.

3.1.3. Proctor-Wise Prismenkompressor

Das Design des Kompressors wurde durch zwei Gesichtspunkte diktiert: Einerseits sollte aufgrund der ohnehin niedrigen Pulsenergie die Effizienz möglichst

^{iv}Fouriertransformlimit: $\Delta\tau\Delta\nu = \Delta\tau\Delta\lambda c/\lambda^2 = 0,31$ für sech²-förmige Pulse (0,44 für ein gaußförmiges Pulsprofil), mit $\Delta\tau$: Pulslänge, $\Delta\nu$ bzw. $\Delta\lambda$: spektrale Breite, λ : Zentralwellenlänge, c : Lichtgeschwindigkeit.

^{v}»CD« in Abb. 3.1: *Cavity Dumper*

^{vi}ASE: Amplified Spontaneous Emission

^{vii}3 Spiegel im Resonator ergeben hier 6 Reflexe pro Umlauf, also insgesamt 108 Reflexe bei 18 Umläufen; vgl. Tabelle 3.1.

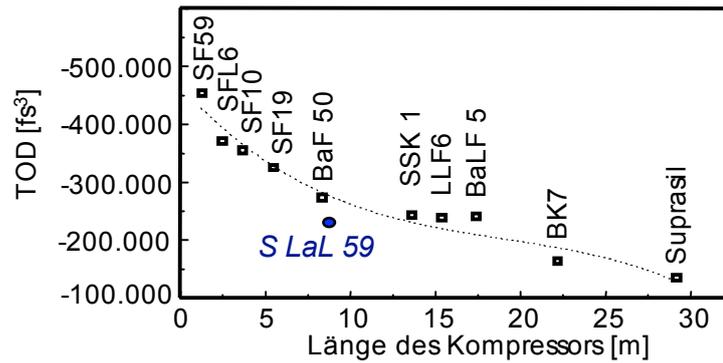


Abb. 3.2.: Berechnete Länge des Kompressors, um die Dispersion zweiter Ordnung des Verstärkers zu kompensieren. Auf der Ordinate ist die resultierende Dispersion dritter Ordnung (TOD) zu erkennen, jeweils für verschiedene Glassorten.

optimiert, andererseits die Pulsdauer zur Erzielung hoher Intensitäten bandbreitenbegrenzt sein. Das Effizienzkriterium sowie Überlegungen zur einfachen Justage des Kompressors führten zur Realisierung eines dem Verstärker nachgeschalteten großen Prismenkompressors, an Stelle der üblichen Gitterkonstruktion. Um einerseits diese Dispersionen in einem handhabbaren Rahmen zu halten und andererseits keine unrealistisch großen Kompressorlängen realisieren zu müssen, wurden zwei Prismenpaare in einem Proctor-Wise-Aufbau [PW92] aus LaL-Glas verwendet. Die Wahl des speziellen Glases S LAL59 (OHARA) wird durch Abb. 3.2 motiviert: Sie stellt einen guten Kompromiß zwischen Kompressorlänge und Betrag der überkorrigierten Dispersion höherer Ordnung dar. Alle Prismenoberflächen stehen im Brewsterwinkel im Strahlengang. Trotz des zweifachen Doppeldurchlaufs durch den Kompressor wird so eine Transmission von ca. 85% erreicht. Die handhabbare Bandbreite wird durch die Größe der Prismen begrenzt^{viii} und beläuft sich auf $\Delta\lambda = 35 \text{ nm}$.

3.1.4. Pulsformung: Spatial Light Modulator (SLM) im 4f-Aufbau

Die im Lasersystem akkumulierte Dispersion ist in Tabelle 3.1 zusammengefaßt. Der Löwenanteil der Dispersion wird im Prismenkompressor (Abs. 3.1.3) kompensiert, die verbleibende Dispersion höherer Ordnung geschieht mit Hilfe gechirpter Spiegel im Verstärker sowie mit einem frei regelbaren Phasenmodulator in einem 4f-Aufbau [Wei95, Wei00]. Aus Gründen der Effizienz – die Transmission beträgt nur 45% – und auch um Beschädigungen durch die hohe Intensität zu vermeiden, erfolgt die Dispersionskontrolle in dem 4f-Modulator

^{viii}Die beiden größeren Prismen haben eine Basiskantenlänge von jeweils 8 cm

nicht nach dem Verstärker, sondern davor. Funktionell wird hierbei, wie in Abb. 3.1 skizziert, der einkommende Puls an einem Gitter in seine Spektralanteile aufgespalten und mit einer Linse wieder parallelisiert. In der Fourierebene arbeitet der computergesteuerte Phasenmodulator (SLM-ELT-128 von Cambridge Research & Instrumentation), und spiegelbildlich zu diesem werden die verschiedenen Spektralanteile durch eine zweite Linse und ein zweites Gitter wieder geometrisch zusammengeführt. Die Phase der einzelnen Spektralanteile wird durch 128 separate Flüssigkristallstreifen mit gewünschter Stärke gegeneinander verzögert. Eine prinzipielle Grenze des maximal einstellbaren Chirps ergibt sich aus dem Nyquist-Theorem, welches in diesem Kontext besagt, daß die Phasendifferenz zweier benachbarter »Farben« nicht mehr als π betragen darf [ZHPM00]. Um die 128 Freiheitsgrade optimal zu nutzen, ist es sinnvoll, keinen fixen Chirp einzustellen, sondern mittels eines adaptiven Algorithmus [BSG99, ZHPM00] ein gegebenes Rückkopplungssignal zu optimieren. Idealerweise liefert das auszuführende Experiment selbst ein solches Signal (bspw. die Anzahl der Elektronen bei einem Ionisationsexperiment), womit automatisch gewährleistet ist, daß in der experimentell interessanten Wechselwirkungszone »ideale« Pulse zur Verfügung stehen.

3.1.5. Pumplaser

Der Femtosekundenlaser verfügt über zwei unabhängige Pumplaser. Der ursprüngliche Aufbau mit nur einem Pumplaser für Oszillator und Verstärker hat sich als zu unzuverlässig erwiesen. Jetzt wird für den Oszillator der unten beschriebene Festkörperlaser verwendet, für den Verstärker der kräftigere Ar-Ionen-Laser.

3.1.5.1. Spectra Physics Millennia Vi

Der Millennia Vi von Spectra Physics ist ein luftgekühlter, diodengepumpter $\text{Nd}^{3+}:\text{YVO}_4$ -Laser. Der eigentliche Laser befindet sich in einem kompakten

Tabelle 3.1.: Dispersion im Lasersystem, aufgeteilt nach zweiter (SOD), dritter (TOD) und vierter (FOD) Ordnung der Taylorreihe.

	SOD [fs^2]	TOD [fs^3]	FOD [fs^4]
RegA / Umlauf	+5 560	+4 240	-1 550
Prismenkompressor / mm Länge	-12,36	-28,36	-55,23
gechirpte TOD-Spiegel / Reflex	+55	+1 600	+1 000 (?)
RegA (18 Umläufe)	+100 080	+76 320	-27 900
Prismenkompressor ($l \approx 8,58$ m)	-106 020	-243 262	-473 746
TOD-Spiegel (108 Reflexe)	+5 940	+172 800	+108 000 (?)
Verbleibende Dispersion	≈ 0	$\approx +5 858$	$\approx -337 846$ (?)

Block von $8 \times 12 \times 27$ cm, die Laserdioden sind in einem separaten Netzteil untergebracht und werden via optische Fasern eingekoppelt. Die generierte Fundamentalwellenlänge von 1064 nm wird noch im Laserresonator mittels eines getemperten Lithiumtriborat-Kristalls (LBO) auf 532 nm frequenzverdoppelt. Die maximale Ausgangsleistung beträgt hier 5 W in einer TEM₀₀-Mode^{ix}, von denen wir lediglich 3,5 W zum Pumpen des Oszillators (Abs. 3.1.1) verwenden. Der Vorteil der resonatorinternen Frequenzverdopplung besteht in der hohen Konversionseffizienz ($P_{2\omega} \propto P_{\omega}^2$), allerdings gibt es, sofern nicht besondere Vorkehrungen getroffen werden, ein Problem mit starken chaotischen Intensitätsschwankungen im frequenzverdoppelten Signal [Bae86]. Der Grund dieser Instabilitäten liegt in nicht-linearen Kopplungen verschiedener Moden des Laserresonators durch Summenfrequenzmischung. Dieses Problem kann umgangen werden, indem man den Laser nur auf genau einer Mode schwingen läßt, oder unter Zuhilfenahme der sogenannten QMAD-Technik^{x}. Im ersten Fall gibt es keine zufällige Kopplungen, weil nur eine Mode schwingt, im zweiten Fall liegen viele Moden innerhalb des Verstärkungsprofils dicht beieinander, so daß sich deren Kopplungen effektiv herausmitteln.

Der Millennia Vi verwendet die QMAD-Technik mit etwa 100 Moden. Für »normale« Anwendungen ist die damit erzeugte Stabilität mehr als ausreichend und in jedem Fall deutlich besser als die eines Ar-Ionen-Lasers, im Vergleich zu Einmodenlasern aber immer noch etwas schlechter. Speziell beim Stabilisieren der CEO-Phase kann dies einen merklichen Nachteil darstellen [WZHE04]. Ein dem Millennia von den restlichen Spezifikationen her nahezu identischer Einmodenlaser wäre der Coherent Verdi-V5.

3.1.5.2. Coherent Innova Sabre R TSM 25

Argon-Ionen-Laser sind die Laser, mit denen sich derzeit die höchsten Strahlungsleistungen im sichtbaren Spektralbereich erzeugen lassen. Sie besitzen mehrere Laserlinien im blauen und grünen Bereich des optischen Spektrums. Kommerziell erhältlich sind Modelle mit Leistungen bis zu $P_{456\sim 514\text{ nm}} = 100$ W. Bei den ökonomischer und stabiler laufenden Nd:YAG-Lasern kamen die ersten $P_{532\text{ nm}} = 10$ W-Modelle erst 1997 auf den Markt, die ersten mit $P_{532\text{ nm}} = 18$ W gar erst 2004. Aufgrund der schlechteren Strahlqualität benötigt man zum Pumpen eines Ti:Saphir-Laserkristalles bei sonst gleichen Bedingungen jedoch nahezu die doppelte Leistung wie bei der Verwendung eines Nd:YAG-Lasers (oder anderer, ähnlicher Festkörperlaser).

Argon-Ionen-Laser bestehen aus einer mit Argon gefüllten, vakuumdicht verschweißten Plasmaröhre aus Berylliumoxid. Diese Keramik besitzt eine hohe Wärmeleitfähigkeit und eine sehr gute Temperaturwechselbeständigkeit, was erforderlich ist, um den enormen Temperaturen des in ihr brennenden

^{ix} $M^2 < 1,1$, Strahllelliptizität $< 10\%$

^{x} QMAD: quiet multiaxial mode doubling

Plasmas widerstehen und die dabei freiwerdende Wärme abführen zu können. Hierzu wird zudem eine hinreichend leistungsfähige Wasserkühlung benötigt. In dem hier verwendeten Lasermodell fließen in dem Plasma Ströme von bis zu 65 A bei einer Spannung von 538 V. Der Sabre R TSM 25 ist von Coherent mit $P = 25 \text{ W}$ und einer TEM₀₀-Mode^{xi} spezifiziert; eine fabrikneue Laserröhre leistet mindestens $P = 30 \text{ W}$. Die Plasmaröhre schließt an beiden Seiten mit horizontal orientierten Brewsterfenstern ab, so daß eine horizontale Polarisation des Lasers garantiert wird. Plasmaröhre und Wasserkühlung erfordern nicht unwesentliche Abmessungen, so daß der Laserkopf immerhin $19 \times 20 \times 214 \text{ cm}$ mißt. Der Sabre verfügt über eine integrierte PowerTrack™-Rückkopplungsschleife, die durch Nachjustieren des Frontspiegels eine optimale Resonatorjustierung aufrechterhält. Hierdurch wird auch die thermisch bedingte Strahldrift stark reduziert. Dennoch hat es sich als extrem nützlich erwiesen, zur vollständigen Kompensation der Strahldrift zusätzlich zwei weitere strahlstabilisierende Piezo-Spiegelhalter außerhalb des Lasers zu ergänzen.

Zum Pumpen des regenerativen Verstärkers (3.1.2) werden alle Linien verwendet, es findet also keine Frequenzselektion statt. Die verwendete Leistung beträgt lediglich 17 W. Somit verfügt der Pumplaser noch über Kapazitäten für Erweiterungen (vgl. Abs. 3.2.1.3).

3.2. Erweiterungen des Lasersystems

Endgültiges Ziel der im folgenden beschriebenen Erweiterungen des Lasersystems war es, phasenstabilisierte Wenigzyklenpulse zu erzeugen, um damit Experimente wie in Kapitel 6 zu ermöglichen. Zudem begannen die Umbauten bereits vor der überraschenden Fertigstellung des *LWS 0,1* (Abs. 5.2, [BUU⁺03]), so daß zu diesem Zeitpunkt noch die Hoffnung bestand, das erste phasenstabilisierte, verstärkte Lasersystem überhaupt fertigzustellen. Aufgrund der Besonderheiten der Verstärkerstufe, insbesondere der mit der kontinuierlichen Pumpe einhergehenden relativen Stabilität, war davon auszugehen, daß nach dem Oszillator nur schwache Driften und Schwankungen der Phase entstehen würden.

Unabhängig von der Phasenstabilisierung ist alleine die Verkürzung der Pulsdauer auf unter 10 fs äußerst interessant, ermöglicht sie doch physikalisch qualitativ neue Einblicke in verschiedene Ionisationsprozesse [GPW⁺03].

Da die zur Erzeugung von sub-10 fs-Pulsen notwendige Bandbreite ($> 100 \text{ nm}$) weder für den bestehenden Verstärker (Abs. 3.1.2) noch den Prismenkompressor (Abs. 3.1.3) handhabbar ist, muß diese hinter dem oben beschriebenen Lasersystem (Abs. 3.1) aus den gegebenen 35 fs-Pulsen generiert werden. Die Technik der Wahl ist hierbei die Spektralverbreiterung in einer edelgasgefüllten Hohlfasern [NDS96]. Die Schwierigkeit besteht nun darin, daß

^{xi} $M^2 < 1,5$

die zur Verfügung stehende Pulsenergie um zwei Größenordnungen kleiner ist als in »typischen« Lasersystemen. Aus diesem Grunde war eine drastische Anpassung der Hohlfasertechnik notwendig. Aufgrund der unvermeidbaren Verluste in der Hohlfaser ist zudem noch eine weitere Erhöhung der Pulsleistung durch Einfügen einer kryogenen Verstärkerstufe notwendig, um schließlich nach der Kompression der Pulse noch genügend Energie für das Experiment zur Verfügung zu haben.

3.2.1. Erhöhung der Laserleistung

Grundsätzlich gilt für fast alle Experimente mit Laserpulsen: eine Energieerhöhung schadet nicht. Wo liegen also die Schwierigkeiten? Man sollte erwarten, daß die Ausgangsleistung P_{aus} in irgendeiner Form proportional zur Pumpleistung P_{pumpe} ist. Tatsächlich ist P_{aus} auch eine monoton steigende Funktion von P_{pumpe} , jedoch beobachtet man ein asymptotisches Anwachsen bis zu einem Schwellenwert P_0 , dann eine Sättigung und schließlich ein drastisches Einbrechen der Leistung (vgl. Abb. 3.6). Erhöht man die Pumpleistung deutlich über P_0 , wird der Verstärker irreversibel beschädigt. Was passiert?

Die maximale Leistungsdichte in einem Laserresonator wird durch die Zerstörschwelle der durchlaufenen Materialien begrenzt. Die höchste Leistungsdichte findet sich im Verstärkermedium, da nur so effizientes Lasen möglich ist. Die Zerstörschwelle von Ti:Saphir liegt je nach Wellenlänge in der Größenordnung von $10 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$, gepulste und kontinuierliche Lichtquellen müssen hier noch unterschieden werden [SFH⁺96, KKL⁺96, LKKK00]. Aufgrund der relativ niedrigen Pulsenergie in unserem 100 kHz-Lasersystem ist dieses Problem jedoch zunächst zweitrangig.

Eine weitere kritische Größe in Femtosekundenlasersystemen ist das sogenannte *B-Integral*, welches ein Maß für die akkumulierte Störung der nichtlinearen Phase entlang der optischen Achse darstellt und durch

$$B = \frac{2\pi}{\lambda_0} \int \frac{\Delta n}{n} dl = \frac{2\pi}{\lambda} \int_{-L/2}^{L/2} \mathcal{E}^2(z) n_2 dz \quad (3.1)$$

definiert wird, mit

- \mathcal{E}^2 : Intensität in W/cm^2 ,
- λ : (Zentral-)Wellenlänge im Medium,
- n_2 : nichtlinearer Brechungsindex, $n = n_0 + \mathcal{E}^2 n_2$,
- L : Materiallänge in Propagationsrichtung z .

Diese Zahl gibt die Phasenverzögerung der hochintensiven Strahlanteile relativ zu denen niedriger Intensität an und sollte erfahrungsgemäß kleiner als 1 – 9 bleiben [Koe88].

Um B für den RegA (Abs. 3.1.2) zu berechnen, werden die Daten für die drei durchlaufenen optischen Komponenten benötigt, nämlich:

- Verstärkerkristall: $n = 1,76$, $n_2 = 2,69 \cdot 10^{-20} \frac{\text{m}^2}{\text{W}}$, $L = 20 \text{ mm}$, $d = 57 \mu\text{m}$

- Güteschalter: $n = 1,45$, $n_2 = 2,86 \cdot 10^{-20} \frac{\text{m}^2}{\text{W}}$, $L = 42 \text{ mm}$, $d = 770 \mu\text{m}$
- *Cavity Dumper*: $n = 1,45$, $n_2 = 2,86 \cdot 10^{-20} \frac{\text{m}^2}{\text{W}}$, $L = 3 \text{ mm}$, $d = 66 \mu\text{m}$

Die letzten beiden Komponenten bestehen aus SiO, der Verstärkerkristall aus Al₂O₃ (Saphir). Die Leistung ergibt sich nach $P = E/\Delta t$ aus Pulsenergie und -länge beim jeweiligen Umlauf. Um die Intensität pro Fläche zu erhalten muß man noch beachten, daß die oben gegebenen Strahldurchmesser nur im jeweiligen Fokus gelten, der Strahl aber divergiert mit

$$d(z) = d_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\frac{\lambda}{n} z}{\pi d_0^2} \right)^2}. \quad (3.2)$$

Verwendet man hier die Näherung $n = n_0$ und setzt dies in (3.1) ein, so folgt mit den obigen Zahlenwerten

$$\begin{aligned} B_{\text{RegA}} &= B_{\text{Ti:Sa}} + B_{\text{GS}} + B_{\text{CD}} \\ &\approx \frac{E}{\Delta t} (9,85 \cdot 10^{-7} + 2,03 \cdot 10^{-8} + 1,93 \cdot 10^{-7}) \left[\frac{\text{s}}{\text{J}} \right]. \end{aligned}$$

Man sieht, daß der Wert des B-Integrals durch den Verstärkerkristall mit fast 80% dominiert wird^{xii}. Bei jedem Umlauf durch den Verstärker nimmt die Pulsenergie E zu, die Pulsdauer Δt ebenfalls. Für den ersten Umlauf gilt näherungsweise $P = E/\Delta t = 3 \text{ nJ}/25 \text{ fs} = 120 \text{ kW}$ und somit $B = 0,14$. Für den 18. Umlauf ist $P = 9 \mu\text{J}/14 \text{ ps} = 643 \text{ kW}$ und $B = 0,77$. Die Pulsstreckung kompensiert zwar die Energiezunahme nicht vollständig, aber das B-Integral zeigt einen Wert, der ohne Bedenken eine Energievervielfachung zulassen würde.

Ein drittes potentiell Problem fällt unter den Begriff *thermische Linse*. Auch dieses folgt aus einem variablen Brechungsindex, hier gilt

$$n = n_0 + n_2 T. \quad (3.3)$$

Für Saphir sind hierbei $n_0 = 1,76$ und $n_2 = dn/dT \approx 1,6 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$ bei Raumtemperatur [DP93]. Der Kristall wird im Resonator längs der optischen Achse zentral gepumpt, die Kühlung erfolgt von außen, folglich bildet sich ein rotationssymmetrisches nach außen radial abfallendes Temperaturprofil aus und ein ebensolches Profil des Brechungsindex: man erhält eine positive Linse (vgl. Abb. 3.3). Zusätzlich erzeugt der Temperaturgradient im Kristall eine Verzerrung desselbigen, insbesondere an den Frontflächen. Auch dieser Effekt resultiert in einer positiven Linse, ist aber deutlich schwächer als die direkte Temperaturabhängigkeit des Brechungsindex und wird daher im Folgenden vernachlässigt. Um die Brennweite der thermischen Linse angeben zu können,

^{xiii} Damit ist klar, daß die Luft im Resonator in der Rechnung zu Recht ignoriert wurde.

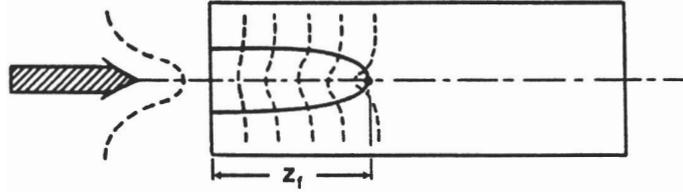


Abb. 3.3.: Selbstfokussierung infolge eines intensitäts- oder temperaturabhängigen Brechungsindex (aus [She84]). Wegen $n_{\text{Strahlmitte}} > n_{\text{Außenbereich}}$ werden die Wellenfronten (gestrichelt) im Zentralbereich stärker verzögert als außen und der Strahldurchmesser (durchgezogene Linie) zieht sich zusammen.

muß man zunächst das Temperaturprofil des zylindrischen Kristalls bestimmen, welches idealisiert durch die stationäre Wärmeleitungsgleichung

$$\frac{d^2T}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dT}{dr} + \frac{Q}{K} = 0 \quad (3.4)$$

beschrieben wird, wobei hier $Q = P/V$ die Wärme pro Volumen repräsentiert und K die Wärmeleitfähigkeit. Für das reale System ist das Volumen $V = L\pi r_0^2$ und die erzeugte Wärme $q = P_{\text{Pumpe(absorbiert)}}$. Nimmt man die Außentemperatur $T(r_0)$ als gegeben an, ist die Lösung von (3.4)

$$T(r) = T(r_0) + \frac{Q}{4K} (r_0^2 - r^2) . \quad (3.5)$$

Somit ergibt sich für den Brechungsindex mit (3.3)

$$n(r) = n_0 - \frac{P}{4L\pi K} \left(\frac{r}{r_0} \right)^2 \frac{dn}{dT} \quad (3.6)$$

und damit schlußendlich für die resultierende Brennweite in guter Näherung

$$f_{\text{th}} = \frac{2\pi r_0^2 K}{P \frac{dn}{dT}} . \quad (3.7)$$

Betrachtet man die gegebene Geometrie des Saphir-Kristalls und die Fokussierung des Ar-Pumplasers, sowie die Absorption von etwa 92%, so zeigt die Rechnung bei 290 K Kühltemperatur eine Maximaltemperatur in der Mitte des Kristalls von 297 K bei 17 W Pumpleistung und 302 K bei 30 W Pumpleistung. Nun hat Saphir aber einen stark temperaturabhängigen Wärmeleitungskoeffizienten, der sich von $K = 0,5 \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ bei 290 K auf $K = 2,5 \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ bei 120 K verfünffacht [DP93]. Bei dieser Kühltemperatur liegen die Maximaltemperaturen im Kristallinneren nur um 1 K (17 W Pumpleistung) bzw. 2 K (30 W Pumpleistung) über der Außentem-

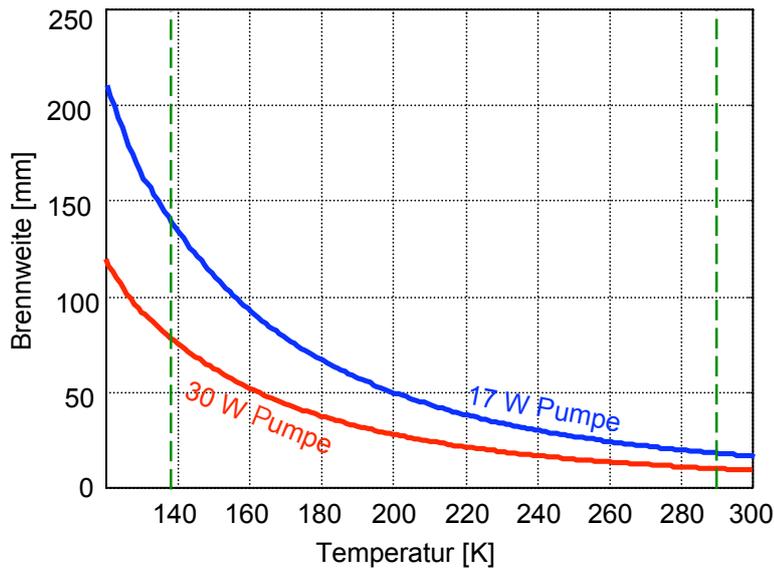


Abb. 3.4.: Thermische Effekte im Saphir-Kristalls des RegA nach (3.7). Die beiden Kurven geben die berechnete Brennweite der *thermischen Linse* bei einer Pumpstärke von 17 W bzw. 30 W als eine Funktion der Kühltemperatur an. Die linke gestrichelte Linie liegt bei 137 K (CryoTiger, Abs. 3.2.1.2), die rechte bei 290 K (Wasserkühlung).

peratur. Die Brechkraft der thermischen Linse sinkt folglich dramatisch, wie Abb. 3.4 eindrucksvoll demonstriert.

Es scheint, daß der limitierende Faktor der Pulsenergie in erster Linie die thermische Linse ist. Der temperaturabhängige Wärmeleitkoeffizient legt die Lösung zu diesem Problem nahe: eine kryogene Kühlung.

3.2.1.1. Kryogene Verstärkerstufe

Nachdem zuvor die Motivation für diesen Umbau gegeben wurde, folgen hier technische Details und Probemessungen. Der Wärmeleitkoeffizient von Saphir erreicht sein Maximum von $110 \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ bei etwa 30 K. Tatsächlich sind für unsere Zwecke bereits Flüssigstickstofftemperaturen mehr als ausreichend, wie man Abb. 3.4 entnehmen kann. Als maximale Pumpleistung stehen zunächst nicht mehr als 30 W vom Ar-Lasers zur Verfügung.

Die praktische Aufgabe bestand nun darin, in den bestehenden Strahlengang eine komplexe, neue Kühlung zu integrieren. Um Kondensation und Anfrieren von Luftfeuchtigkeit zu verhindern, muß der Laserkristall zudem in eine Vakuumapparatur integriert werden, durch die der Laserstrahl mittels zweier Brewsterfenster passieren kann. Die gemessenen Verluste pro Fenster liegen bei etwa 0,7‰, was sich pro Umlauf auf knapp 3‰ aufaddiert und als unkritisch angesehen werden kann. Abb. 3.5 zeigt die hierzu entworfene Vaku-

umkammer, die mittels eines robusten Verschiebetisches über dem Verstärker montiert und zudem um die senkrechte Achse drehbar gehalten ist. Das Vakuum wird von einer kompakten 60 l/s-Turbomolekularpumpe *TMH 071 P* von Pfeiffer Vacuum erzeugt (in der Abbildung ist lediglich der Flansch eingezeichnet; ein anderer Flansch nimmt das Druckmeßgerät auf) und erreicht einige 10^{-8} mbar, das Kühlaggregat ist ein *Cryotiger* (s. Abs. 3.2.1.2). Der Kristall ist für einen optimalen thermischen Kontakt in Indiumfolie gewickelt und in eine vergoldete Kupferstange (Kühlfinger in der Abbildung) von $\varnothing = 20$ mm Stärke geklemmt, die wiederum am Cryotiger befestigt ist. Wegen der räumlichen Beschränkungen ist diese Verlängerung von 176 mm notwendig: Der Laser ist im Resonator z-förmig um den Kristall gefaltet, so daß die Vakuumkammer dort extrem kompakt konzipiert werden mußte. Zu befürchten war eine druckinduzierte Doppelbrechung im Kristall aufgrund thermischer Verspannungen beim Abkühlen; diese wurden aber nicht beobachtet.

In dem hier verwendeten Vakuumaufbau (s. Abb. 3.5) wird am Kristall ohne Last eine Temperatur von -175 °C gemessen. Im Betrieb bei einer Pumpleistung von 30 W mit dem Ar^+ -Laser werden noch -136 °C erreicht. Wird der Resonator geblockt, so daß die Besetzungsinversion im Ti:Saphir-Kristall nicht durch stimulierte Emission abgeräumt werden kann, steigt die Temperatur um etwa 12 °C an. Als Meßsonde hierfür diente ein in den Kühlfinger geklemmtes Thermoelement *LKA 10/25* von Thermocoax.

Der Cryotiger verfügt über keine Temperaturregelung, die Endtemperatur hängt lediglich von der gegebenen Wärmelast ab. Temperaturabhängige Messungen können durchgeführt werden, wenn beim kalten System die Kühlung deaktiviert wird. Aufgrund der großen Masse und Wärmekapazität der Kupferhalterung dauert es mehrere Stunden, bis der Kristall sich auf Zimmertemperatur aufgeheizt hat.

3.2.1.2. Cryotiger

Anstelle einer Kühlung mit flüssigem Stickstoff und einer Konstruktion mit einem Dewar-Vorratsbehälter, der laufend manuell nachgefüllt werden müßte, wurde hier ein kommerzieller Kühlkopf mit einem geschlossenen Kühlkreislauf verwendet: ein *Cryotiger*[®] *PT16* von IGC APD Cryogenics. Das Gerät arbeitet nahezu vibrationsfrei, da der Kühlkopf selbst keine beweglichen Teile enthält. Das Kühlmittel wird durch 3,1 m lange Hochdruckgasleitungen vom Kompressor zum Kühlkopf gepumpt. Typisch werden Temperaturen von $T = 120$ K = -158 °C bei einer Wärmelast von 20 W erreicht.

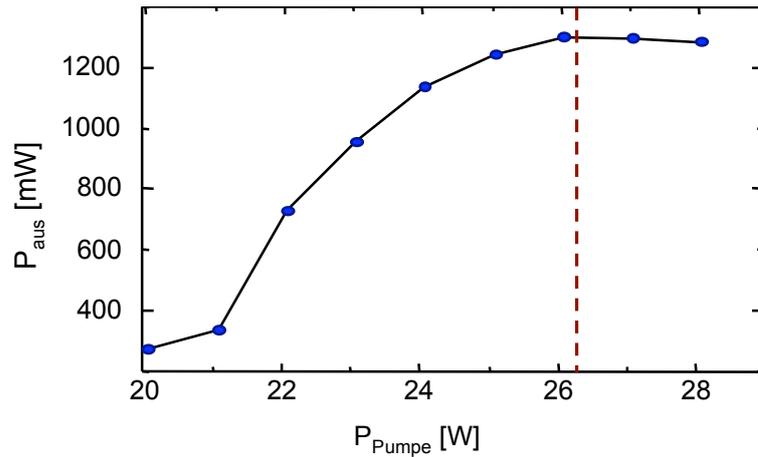


Abb. 3.6.: Ausgangsleistung P_{aus} der kryogenen Verstärkerstufe in Abhängigkeit der Pumpleistung P_{Pumpe} des Ar^+ -Lasers. Die gestrichelte Linie symbolisiert P_0 .

3.2.1.3. Effekte der kryogenen Kühlstufe

Tatsächlich konnte mit diesem Umbau die Pumpleistung über das vorher gefundene Maximum von $P_{\text{Pumpe}} = 17 \text{ W}$ erhöht werden, und zwar bis 26 W. Warum eine weitere Steigerung der Leistung nicht möglich war, konnte nicht abschließend geklärt werden. Die obigen Abschätzungen lassen Probleme aufgrund nichtlinearer Effekte kaum erwarten. Möglicherweise beeinflusst die sich bei hohen Leistungen verschlechternde Modenqualität des Pumplasers das Ergebnis. Eine Variation der Blendenöffnung im Ar-Ionenlaser zeigte jedoch keinen eindeutigen Effekt. Austauschen der Fokussierungsoptik zum Ausgleich eventuell aufgetretener Divergenzänderungen erbrachte ebenfalls keine Verbesserung.

Interessanter als die nominelle Erhöhung der Pumpleistung ist die resultierende Ausgangsleistung P_{aus} . Bei optimaler Justierung konnte die Leistung von 850 mW auf 1250 mW erhöht werden, was einer Leistungssteigerung von 47% entspricht. A priori-Abschätzungen mittels dem Frantz-Nodvik-Formalismus [FN63] erweisen sich leider als problematisch, da zu viele Größen innerhalb des Verstärkers nicht oder nur ungenau bekannt sind. Abbildung 3.6 zeigt die Ausgangsleistung als Funktion der Pumpleistung.

Bemerkenswert ist noch eine Messung zur Temperaturabhängigkeit der Ausgangsleistung. Man sollte erwarten, daß P_{aus} mit steigendem T stark abfällt, da die Störungen aufgrund der thermischen Linse kontinuierlich ansteigen. Tatsächlich sieht der Verlauf aus wie in Abb. 3.7: Bis $T_C = -40 \text{ °C}$ bleibt die Leistung stabil. Bei höheren Temperaturen nimmt sie schnell ab, außerdem wird das Signal sehr instabil. Ein solch hoher Wert von T_C ist erstaunlich und läßt sich nicht mit der starken Temperaturabhängigkeit $K(T)$ der Wärmeleitung von Saphir erklären. Nun wird die Wärmeleitung in Isolatoren vorwiegend durch Gitterschwingungen übernommen, es ist $K \propto n_{\text{Ph}} l_{\text{Ph}}$,

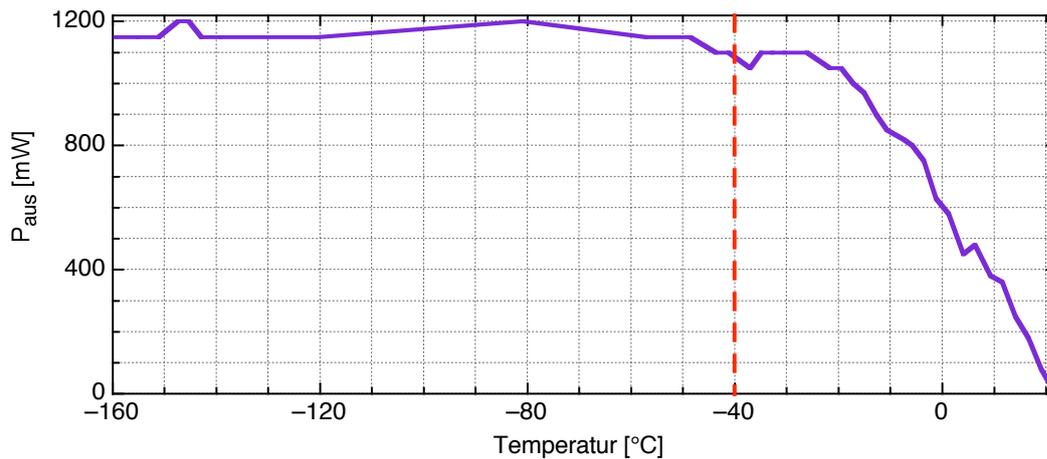


Abb. 3.7.: Ausgangsleistung des kryogen gekühlten RegA als Funktion der Temperatur. Deutliche Effekte treten erst ab $T > -40$ °C auf, dann nimmt auch die Stabilität des Signals deutlich ab.

wobei hier n_{Ph} die Phonondichte und l_{Ph} die freie Weglänge der Phononen ist. Durch die Dotierung des Saphirs mit Ti^{3+} -Ionen sollte l_{Ph} geringfügig abnehmen und ein kleinerer Wert für den Wärmeleitkoeffizienten K resultieren. Wie sich jedoch die Dotierung auf die Temperaturabhängigkeit $K(T)$ auswirkt, ist nicht trivial. In der Literatur konnten keine Daten für $K(T)$ von Ti:Saphir als Funktion der Dotierung gefunden werden.

Zusammenfassend bleibt zu sagen, daß die Erwartungen der kryogenen Verstärkerstufe nicht gänzlich erfüllt wurden. Insbesondere die unerwartet klein ausgefallene Temperaturabhängigkeit suggeriert, daß mit weniger Aufwand (Glycol-Kühlung) die erreichte Leistungssteigerung von knapp 50% ebenso hätte erreicht werden können.

3.2.2. Verkürzung der Pulslänge

Um die Pulslänge des Lasersystems weiter zu verkürzen muß die spektrale Bandbreite entsprechend vergrößert werden. Teilweise könnte dies durch breitbandigere dielektrische Spiegel im Verstärker erreicht werden, allerdings bringt dies allerlei Komplikationen mit sich. Zudem kann der dem Verstärker nachgeschaltete Kompressor aus geometrischen Gründen (Prismengröße) keine größeren Bandbreiten verkraften. Die Bandbreite muß folglich hinter dem bestehenden Lasersystem vergrößert werden.

Hierzu liegt es nahe, die aus der hohen Intensität der Laserpulse resultierenden nichtlineare Effekte auszunutzen, insbesondere die *Selbstphasenmodulation* (SPM). Hierdurch werden neue Frequenzen erzeugt, d. h. das Spektralprofil verbreitert sich. Insbesondere sind die so erzeugten Spektralanteile kohärent, der Puls kann somit auch zeitlich komprimiert werden.

3.2.2.1. Selbstphasenmodulation (SPM)

Die SPM ist ein nichtlinearer Effekt 3. Ordnung, hängt im Material also von $P^{(3)}$ und $\chi^{(3)}$ ab^{xiii}. Hier wirkt sich die Zeitabhängigkeit der Intensität $I = I(t)$ nun direkt auf das Frequenzspektrum des Pulses aus: Die Momentanfrequenz $\omega(t)$ ist die zeitliche Ableitung der Phase $\phi(x, t)$. Im Beispiel einer monochromatischen Eingangswelle mit

$$\mathcal{E}(z, t) = \mathcal{E}_0 e^{i(\omega_0 t - kz)} = \mathcal{E}_0 e^{i\left(\omega_0 t - \frac{\omega_0 n(t)}{c} z\right)} = \mathcal{E}_0 e^{i\phi(z, t)} \quad (3.8)$$

ergibt sich so die momentane Frequenz zu

$$\omega(t) = \frac{\partial}{\partial t} \phi(z, t) = \omega_0 - \frac{\omega_0}{c} \frac{\partial n(t)}{\partial t} z \quad (3.9)$$

und entsprechend die Frequenzvariation zu

$$\delta\omega(t) = \omega(t) - \omega_0 = -\frac{1}{2} \frac{\omega_0 n_2}{c} z \frac{\partial I(t)}{\partial t}. \quad (3.10)$$

Folglich verschieben sich die Frequenzen an den Pulsflanken, wie in Abb. 3.8 dargestellt. Insgesamt entstehen neue Frequenzen und somit ein breiteres, aber immer noch kohärentes Spektrum.

Fokussiert man einen fs-Puls in ein stabiles, optisch transparentes Material wie bspw. Saphir, so beobachtet man extrem starke SPM. Es resultiert ein scheinbar weißes Ausgangssignal, welches mehrere Oktaven im Frequenzraum überspannen kann. Jedoch nimmt die spektrale Breite dieser Pulse radial nach außen stark ab, da die SPM im zentralen Bereich des Laserstrahles, wo die größte Intensität herrscht, auch am stärksten ist. Soll dieser Puls für weitere Experimente verwendet werden, so ist man gezwungen, nur auf den räumlich zentralen Teil desselbigen zurückzugreifen [RC88], was starke Verluste der Intensität bedeutet. Noch dazu kann das optische Medium sehr leicht zerstört werden.

Um diese prinzipielle Schwierigkeit zu umgehen, haben NISOLI *et al.* die Selbstphasenmodulation von einem Festkörper in ein Edelgas verlagert und die Fokussierung durch einen Wellenleiter optimiert [NDS96, NSD⁺97].

3.2.2.2. Hohlfaserkompressor

Der Trick, um die SPM optimal zur Spektralverbreiterung auszunutzen, sieht aus wie folgt: Eine Glaskapillare mit einem Innendurchmesser von wenigen 100 μm und einer typischen Länge von knapp 1 m wird in einer V-förmigen Mulde in einem Aluminiumblock gehalten. Hierdurch wird garantiert, daß sie

^{xiii} Polarisation $P(r, t) = \varepsilon_0 \sum_{i=1}^n \chi^{(i)} \mathcal{E}(r, t)$, mit χ : Materialsuszeptibilität.

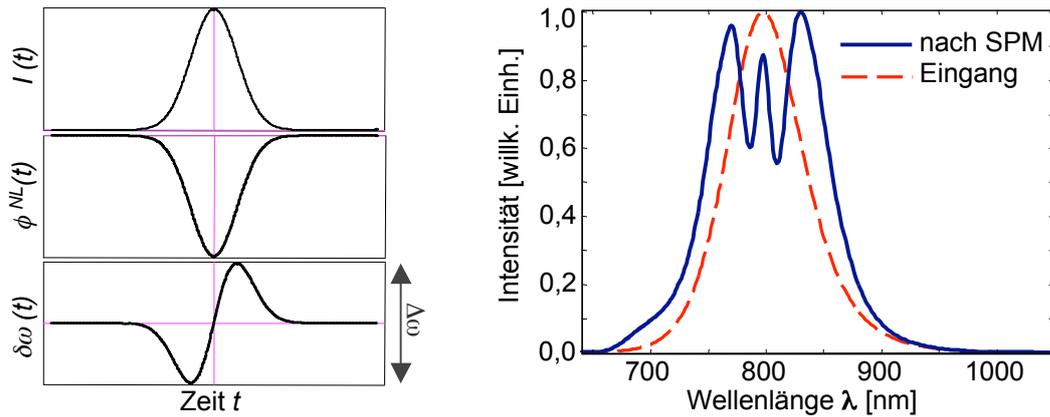


Abb. 3.8.: Nichtlinearer Anteil der Phase ϕ und Frequenzänderung $\delta\omega$ in Relation zur Zeitabhängigkeit der Pulsintensität. *Rechts* das simulierte Spektrum eines zunächst sech^2 -förmigen Pulses (gestrichelt) nach dem Wirken der SPM.

über die gesamte Länge gerade ausgerichtet ist^{xiv}. Die Faser wird nun samt Halterung in eine edelgasgefüllte Kammer mit zwei Quarz-Fenstern gelegt. Typisch wird hierzu Argon bei einem Druck von etwa 1 bar verwendet. Der Laserpuls wird durch das Fenster hindurch auf das eine Ende der edelgasgefüllten Kapillare fokussiert und dann durch Reflexion im Inneren der Faser geführt. Wegen des kleinen Innendurchmessers der Faser ist die lokale Feldstärke $|\mathcal{E}|$ sehr hoch und der Puls kann über die volle Länge der Kapillare effektiv SPM erfahren. Am Ende der Faser tritt der Puls mit der gleichen Divergenz wie beim Eintritt wieder aus und kann durch eine einfache Fokussierungsoptik wieder kollimiert werden.

Die Pulspropagation im Inneren der Kapillare ist wegen $n_{\text{Glas}} > n_{\text{Edelgas}}$ keine Totalreflexion, sondern verlustbehaftete Reflexion im streifenden Einfall. Die Verluste für Moden höherer Ordnung sind deutlich größer als die für die Fundamentalmode, d. h. die Faser hat eine modenreinigende Wirkung. Gemäß [MS64] ist die Fundamentalmode in einem dielektrischen Hohlleiter eine EH_{11} -Mode. Die Verluste hierfür sind proportional zu r_0^{-3} , genauer ist die Dämpfungskonstante gegeben durch

$$\alpha = \left(\frac{2,405}{2\pi} \right)^2 \frac{\lambda^2}{r_0^3} \frac{(n_a/n_i)^2 + 1}{\sqrt{(n_a/n_i)^2 - 1}}. \quad (3.11)$$

Das Radialprofil des austretenden Strahls ist nicht gaußförmig, sondern eine

^{xiv}Dies ist extrem kritisch, da selbst eine leichte Krümmung der Faser die Leitungsverluste drastisch ansteigen läßt [MS64].

Airy-Scheibe, wird also durch eine Besselfunktion

$$I(r) = I_0 J_0^2\left(2,405 \frac{r}{r_0}\right) \quad (3.12)$$

beschrieben, mit r_0 : Kapillareninnenradius, λ : Laserwellenlänge, n_a : Brechungsindex der Kapillare und n_i : Brechungsindex der Gasfüllung. Das Radialprofil kann in speziellen Fällen von Interesse sein, wenn der Strahl unmittelbar aus der Faser austretend zum Experiment fokussiert wird und makroskopische Phasen Anpassung einen großen Einfluß hat [NPS⁺02]. Zumeist spielt es aber keine praktische Rolle.

Aufgrund der Dispersion im Gas verlängert sich der Puls und die Intensität sinkt kontinuierlich, so daß es keinen Nutzen hat, die Wechselwirkungslänge beliebig zu vergrößern. Sehr wohl kann aber der Puls nach dem Austritt aus der Faser mit einem Prismenkompressor oder gechirpten Spiegeln komprimiert und in eine zweite Faser eingekoppelt werden [SBK⁺03].

Hieran sieht man bereits, daß Dispersion und SPM sich streng genommen nicht vollständig voneinander trennen lassen. Die Beschreibung aus Abs. 3.2.2.1 ist hier folglich nur als Idealisierung der auftretenden Effekte zu verstehen. Tatsächlich gibt es durch das Wechselspiel von SPM und Dispersion qualitativ neue Effekte, die durch den Begriff der *optischen Wellenbrechung* beschrieben werden [TSJ85]: Wegen des frequenzabhängigen Brechungsindex ist das rotverschobene Licht nahe der Vorderflanke des Pulses schneller als die anderen Spektralanteile und überholt diese. An der Pulshinterflanke gilt entsprechend Umgekehrtes für die blauverschobenen Frequenzen. In beiden Fällen enthalten die Flanken des Pulses Licht verschiedener Frequenzen, welches interferiert: im Spektrum des Pulses entstehen feine Oszillationen. Dies erklärt zum Teil, warum die real gemessenen Spektren (Abb. 3.9) deutlich rauher aussehen als das idealisierte Spektrum aus Abb. 3.8.

Bei der relativ geringen Dispersion im Gas ist die SPM dennoch der eindeutig dominanteste Effekt. Dahingegen herrscht bspw. in (hier nicht betrachteten) Glasfasern ein völlig anderes Regime, und optische Wellenbrechung, asymmetrische Effekte (*self-steepening*) oder *Solitonen* können die dominierende Effekte sein. Eine schöne Ausführung hierzu findet sich in Kapitel 4 von [Agr89].

Die Motivation für die Verwendung von Edelgasen ist deren hohe Ionisationsschwelle. Trotzdem kann es bei sehr hohen Laserintensitäten zur Ionisation kommen. Im Plasma kommt die SPM zum Erliegen, aber es resultiert ein Brechungsindex $n < 1$ [TB98]. Durch geschickte Wahl der Parameter kann dies dazu ausgenutzt werden, direkt aus der Hohlleiter kurze Pulse zu erzeugen [WGP⁺04], ohne einen Kompressor nachschalten zu müssen.

Bei unserem Laser sind aufgrund der geringen Energie Ionisationseffekte nicht zu fürchten. Wir stehen vor dem umgekehrten Problem, daß kaum genügend Energie zur Spektralverbreiterung vorhanden ist. Alle bisherigen Demonstrationen der beschriebenen Hohlfaserkompressoren wurden mit Pulsenergien im mJ-Bereich durchgeführt. Bei uns sind es zwei Größenordnungen weniger. Dies ist umso dramatischer, da der Effekt nicht linear von der Intensität abhängt. Aus diesem Grund ist es notwendig, den Aufbau auf eine optimale Ausnutzung der vorhandenen Pulsenergie auszulegen.

Zum Erreichen einer hohen Intensität innerhalb der Faser wurde die Pulsenergie erhöht (Abs. 3.2.1.3) und vor allem der Faserradius r_0 sehr klein gewählt. Wegen der steigenden Verluste mit kleinerem Faserradius galt es, hier einen geeigneten Kompromiß zu finden. Zur weiteren Steigerung der Effizienz wurde ein Gas mit einem maximal großen, nichtlinearen Brechungsindex gewählt: Xenon^{xv}. Nach [LLP85] gilt $\chi^{(3)}(\text{Xe}) = 2,94 \cdot \chi^{(3)}(\text{Kr}) = 8 \cdot \chi^{(3)}(\text{Ar}) = 188 \cdot \chi^{(3)}(\text{He})$. Die im Vergleich zu anderen Edelgasen niedrigere Ionisationsschwelle ist hier nicht von Bedeutung, störend ist lediglich der hohe Preis von etwa €10,-/ℓ (unter Normbedingungen). Insbesondere da aus Effizienzgründen ein hoher Druck von etwa 5 bar erzeugt werden muß, ist darauf zu achten, das Totvolumen der die Faser aufnehmenden Kammer möglichst klein zu halten.

Mehrere Hohlfasern verschiedener Längen und Durchmesser wurden getestet. Hierbei fiel auf, daß selbst von den Kenndaten her identische Fasern starke Unterschiede aufwiesen; Lieferer war die Fiber Tech GmbH, Berlin. Die auf vielen Fasern standardmäßig aufgebraachte Acrylat-Schutzschicht hat sich als sehr störend erwiesen, da diese beim Einkoppeln des Lasers leicht aufgeschmolzen werden kann und die Öffnung verdeckt. Ideal sind relativ dicke Fasern ($\varnothing_a \simeq 1 \text{ mm}$) ohne Beschichtung. Besonders zu achten ist auf eine saubere Bruchkante, also darauf, daß die Kapillarenöffnung an beiden Enden möglichst ideal kreisförmig erscheint. Andernfalls ist mit größeren Verlusten beim Einkoppeln und einem höheren »Verschleiß« der Faser zu rechnen. Der optimale Kompromiß zwischen Intensität und Verlusten fand sich bei einem Kapillarendurchmesserbereich von $\varnothing_i = 130 \mu\text{m}$. Vergleicht man Fasern von 65 und 95 cm Länge, so ist der Unterschied der Ausgangssignale nur marginal, insbesondere sind die Verluste ähnlich^{xvi}. Hieraus kann man schließen, daß der Löwenanteil der Verluste bei der Einkopplung passiert, was wenig überrascht. Zur Einkopplung wird ein sphärischer Spiegel mit einer Brennweite von $f = 350 \text{ mm}$ verwendet, womit der Fokus einen Durchmesser von $110 \mu\text{m}$ hat, was etwa 85% des Faserinnendurchmessers beträgt. Der Fokus ($z_R = 4,7 \text{ cm}$) liegt ca. 1 cm vor der Faseröffnung. Es ist darauf zu achten, daß

^{xv}Das noch besser geeignete Radon kommt aufgrund seiner Radioaktivität nicht in Betracht.

^{xvi}Rechnerisch liegt der Durchlaß bei $T(95 \text{ cm}) = 77\%$ bzw. $T(65 \text{ cm}) = 84\%$, tatsächlich bei $T = 40 - 45\%$. Zu beachten ist allerdings auch, daß die Austrittsmode ein merklich besseres Profil als die Eintrittsmode hat, was für einen Teil des Energieverlustes wieder entschädigt.

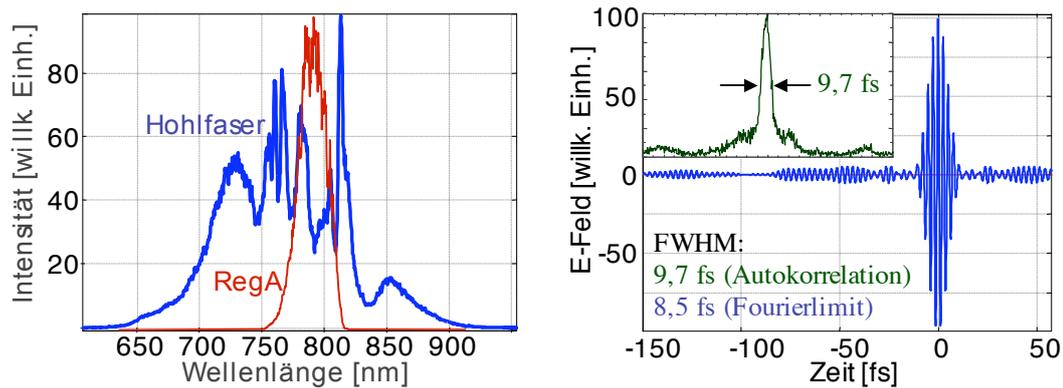


Abb. 3.9.: *Links*: Pulsspektrum vor (rot) und nach (blau) der Hohlfaser. Die Eingangsenergie betrug $E_{\text{in}} = 9,4 \mu\text{J}$, die 130 μm -Faser war mit 5 bar Xe befüllt. *Rechts*: Das \mathcal{E} -Feld des ideal komprimierten Pulses ergibt sich durch Fouriertransformation, die entsprechende Pulslänge beträgt 8,5 fs. Die Autokorrelation nach Kompression mit gechirpten Spiegeln (kleiner Graph) ergibt einen gemessenen Wert von 9,7 fs.

der Eingangstrahl keinen räumlichen Chirp aufweist, andernfalls wird das Ausgangssignal der Faser durch starke räumliche Unterschiede unbrauchbar. Um einen optimal vorgechirpten Puls als Eingangspuls zur Verfügung zu haben, wird dieser von dem SLM (Abs. 3.1.4) mit einem evolutionären Algorithmus optimiert. Als Rückkopplungssignal dient hierbei die theoretisch erreichte Ausgangspulslänge, also die zeitliche Breite der Fouriertransformierten des Ausgangsspektrums.

Hiermit konnten nun Spektren mit einer Halbwertsbreite von $\Delta\lambda > 100 \text{ nm}$ und einem Fouriertransformlimit von $\Delta\tau_{\mathcal{F}} = 8,6 \text{ fs}$ erzeugt wurden. Nach Kompression mit gechirpten Spiegeln wurden in der Autokorrelation immerhin noch $\Delta\tau = 9,7 \text{ fs}$ Halbwertsbreite gemessen (s. Abb. 3.9). Vergleicht man die somit erzeugte Spitzenleistung von 270 MW (35 fs, $9,4 \mu\text{J}$) vor der Faser mit den 380 MW (9,7 fs, $3,7 \mu\text{J}$) nach der Faser, so stellt man fest, daß nicht nur physikalisch interessante kurze Pulse zur Verfügung stehen, sondern auch real höhere Leistungen, noch dazu in einer räumlich nahezu perfekten Mode.

3.2.3. Strahlstabilisierung

Bis auf wenige Ausnahmen besitzen alle Lasersysteme eine von der Ruhetemperatur verschiedene Betriebstemperatur, mindestens gibt es einen unterschiedlichen Temperaturgradienten innerhalb des Systems, je nachdem ob Kühlung, Pumpen (Pumplaser, Diodenbänke, etc.) und elektronische Kom-

ponenten (AOMs^{xvii}, EOMs^{xviii}, Steuerelektronik, Computer, etc.) nun in Betrieb sind oder nicht. Mit verschiedenen thermischen Zuständen sind aufgrund von Materialexpansion und -kontraktion auch verschiedene geometrische Zustände verbunden. In einem komplexen optischen System mit Strahlengängen von vielen Metern Länge macht sich dies stark bemerkbar. So sind grundsätzlich mehrere Stunden Aufwärmzeit nötig, bevor sinnvoll gearbeitet werden kann. Selbst danach^{xix} sind noch periodisch Nachoptimierungen notwendig. Die thermischen Verstellungen äußern sich auf zweierlei Weisen:

1. nachlassende Leistung,
2. geometrische Drift des Ausgangssignales.

Der erste Punkt ließe sich nur durch eine überdimensionierte Temperaturstabilisierung verbessern, eine automatische Nachjustierung der betroffenen Optiken macht angesichts ihrer Anzahl keinen Sinn. Für den zweiten Punkt liegt die Situation anders, denn eine Strahldrift kann einfach mittels zweier Spiegel korrigiert werden. Zudem ist dies der störendere Effekt, denn wegen der langen Strahlwege zwischen Laser und Experiment, macht sich selbst eine sehr kleine Winkelveränderung des Strahls deutlich bemerkbar.

Aus diesem Grund wurde das Lasersystem um zwei computergesteuerte 2D-Piezospiegelhalter von Piezo Jena und zwei zugehörige preisgünstige CCD-Kameras^{xx} ergänzt. An der Prinzipskizze 3.10 kann man unschwer erkennen, daß die relative Winkelauflösung der Kameras steigt, wenn der Abstand zwischen Spiegel und Kamera (in der Skizze \bar{Aa} und \bar{Bb}) möglichst groß ist, zudem sollte der Abstand der beiden Piezospiegel nicht zu klein sein. Der ideale Ort, um diese zusätzliche Strahlstabilisierung ins Lasersystem zu integrieren, ist innerhalb des Kompressors (Abs. 3.1.3). Der Strahlenweg für jeden der beiden nahezu identischen Durchläufe beträgt fast 9 m. In Abb. 3.1 sind die Piezospiegel markiert, der erste ist der Spiegel direkt vor dem Kompressor, der zweite der Spiegel $S2$ darin. Die Kameras sind hinter den Spiegeln $S2$ und $S3$ positioniert.

In Abb. 3.1 findet der aufmerksame Beobachter noch weitere als die genannten Piezospiegel zur Strahlstabilisierung: Der Ausgang des Oszillators ist stabilisiert (um diese Komponente vom Restlaser geometrisch zu entkoppeln), genau wie der Ar-Ionen-Pumplaser (wegen sehr starker thermischer Drift). Der wesentliche technische Unterschied besteht darin, daß der zu stabilisierende Strahl in diesen beiden Fällen kontinuierlich, bzw. nahezu

^{xvii} AOM: Akusto-Optischer Modulator, z. B. der Güteschalter im RegA aus Abs. 3.1.2

^{xviii} EOM: Elektro-Optischer Modulator, z. B. eine Pockelszelle

^{xix} Ein Erfahrungswert von unserem Lasersystem: Erst nach ca. 20 Stunden herrscht ein vollständiges thermisches Gleichgewicht, so daß keine Nachjustierungen mehr notwendig werden. Mehrtägige Meßkampagnen sind jedoch eher die Ausnahme, da man nur ungern das System unbeobachtet über Nacht durchlaufen läßt.

^{xx} CCD: Charge-coupled Device, ein lichtempfindliches Halbleiterbauteil.

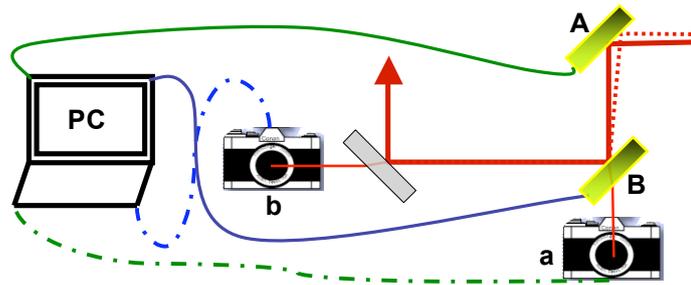


Abb. 3.10.: Prinzip der Strahlstabilisierung. Die piezogehalterten Spiegel *A* und *B* werden vom Computer gesteuert, das entsprechende Rückkopplungssignal kommt dabei jeweils von den zugehörigen Kameras *a* und *b*, die das Lecklicht hinter den Spiegeln betrachten. Der gepunktete rote Strahl symbolisiert einen »dejustierten« Laser, welcher nach Spiegel *B* aber bereits nicht mehr von der Soll-Lage unterscheidbar ist. Hier sieht man auch, daß ein einzelner Spiegel zur Stabilisierung nicht genügen würde, da Spiegel *B* unter verschiedenen Winkeln getroffen wird.

kontinuierlich ist (eine Repetitionsrate von 80 MHz läßt sich elektronisch leicht »glätten«). So dient hier als Diagnosewerkzeug eine Quadrantendiode, welche unmittelbar zwei analoge Fehlersignale generiert. Für niedrige Repetitionsraten kann diese jedoch nicht eingesetzt werden, da sie durch das Signal übersättigt würde. Die Trägheit der CCDs ist in diesem Fall ein Vorteil, denn so integrieren diese über mehrere Pulse. Aus dem gleichen Grund beträgt die Bandbreite der Rückkopplungsschleife bestenfalls 10 Hz, was angesichts der Zeitskala der thermischen Drift im Minutenbereich jedoch keine Einschränkung bedeutet^{xxi}.

Auch wenn die Strahlstabilisierung nur eine elementare technische Erweiterung darstellt, ist die Langzeitstabilität und der allgemeine Bedienkomfort des Lasersystems hierdurch enorm gesteigert. Nicht nur kann mit deutlich verkürzten Aufwärmzeiten gearbeitet werden, auch die Justierung von einem Tag zum nächsten ist nun denkbar einfach, denn durch die feste Installation der Kameras wird immer auf dieselbe Geometrie stabilisiert.

^{xxi} 10 Hz ist die Auslesefrequenz jeder der verwendeten Kameras. Der PC liest beide Kameras mittels eines elektronischen Umschalters über eine einzige Schnittstelle (*Frame Grabber*) aus. Zusammen mit der Bildaufbereitung und der Berechnung der Strahlposition sinkt so die tatsächlich nutzbare Bandbreite auf etwa 1 Hz.

4. Ionisationsexperimente mit ultrakurzen Pulsen

Das Vorhandensein einer hochrepetitiven, aber gleichzeitig hochintensiven Laserquelle ermöglicht systematische Messungen und vereinfacht die Analyse, wie bestimmte Prozesse von bestimmten Parametern abhängen. Alle in diesem Kapitel beschriebenen Messungen wurden mit unserem hochrepetitiven 100 kHz-Lasersystem aus Kapitel 3 vollzogen. Untersucht wurden mehrere Ionisationsphänomene verschiedener Atome und Moleküle. An experimentellen Aufbauten standen hierzu ein Reaktionsmikroskop und ein hochpräzises TOF-Elektronenspektrometer zur Verfügung.

 EI DEN hier vorgestellten Messungen konnte unser 100 kHz-Lasersystem seine besondere Stärke, die hohe Repetitionsrate, voll zur Geltung bringen. Speziell bei den Korrelationsmessungen mußte die Intensität extrem niedrig gewählt werden, woraus minimale Zählraten resultieren. Dennoch konnte zumeist nach wenigen Minuten abgeschätzt werden, ob der Parameterbereich für eine längere Messung sinnvoll gewählt war, was der Effizienz der Experimente sehr zugute kam.

Die zwei Teile dieses Kapitels beschreiben zwei sehr verschiedene Meßkampagnen. Der erste Teil (Abs. 4.1) kam in einer Kollaboration mit der Gruppe um H. ROTTKE vom MBI (Berlin) zustande. Diese hat die verwendete COLTRIMS-Apparatur konstruiert, mit der (prinzipiell) kinematisch vollständige Messungen des Ionisationsprozesses durchgeführt werden können. Hauptziel war es, einen genaueren Einblick in die detaillierten Prozesse der nichtsequentiellen Doppelionisation (NSDI, Abs. 2.4.2) zu erlangen und den dominierenden Ionisationskanal bei verschiedenen Parametern zu bestimmen. Der zweite Teil (Abs. 4.2) behandelt systematische ATI-Messungen an Alkaliatomen. Die Motivation hierzu liegt in einem besseren Verständnis der zugrundeliegenden ATI-Mechanismen (Abs. 2.4.1), insbesondere den Besonderheiten, die aus der leichten Ionisierbarkeit der gewählten Atome resultieren. Im Gegensatz zur oben genannten Kampagne versagt hier das semiklassische 3-Stufen-Modell und eine formalere quantenmechanische Beschreibung wird notwendig.

Im Folgenden werden jeweils die experimentellen Aufbauten beschrieben und die einzelnen Messungen präsentiert und analysiert.

4.1. Elektronenkorrelationsmessungen

Die Motivation dieser experimentellen Kampagne war es, einen genaueren Einblick in die detaillierten Prozesse der nichtsequentiellen Doppelionisation (NSDI, Abs. 2.4.2) zu erhalten. Dabei interessiert uns hier speziell den Einfluß der atomaren bzw. molekularen Struktur auf die Impulskorrelation der Photoelektronen, sowie das Verhalten in klassisch nicht zugänglichen Energiebereichen. Die beiden Unterkapitel (4.1.2 und 4.1.3) leiten sich jeweils mit einer kurzen Motivation in die spezielle Fragestellung ein. Zuvor wird jedoch der Aufbau des Experimentes beschrieben.

4.1.1. Experimenteller Aufbau: Reaktionsmikroskop

Die hier von uns verwendete Meßapparatur wird als *Reaktionsmikroskop* bezeichnet [MUS⁺96]. Historisch betrachtet handelt es sich hierbei um eine erweiterte COLTRIMS-Apparatur^{i} [DMJ⁺00]. COLTRIMS selbst ist eine Weiterentwicklung der Rückstoßionen-Impulsspektroskopie^{ii} [USB87, UHD⁺88], welche vollständige Messungen des Rückstoßimpulses von Ionen bei atomaren Kollisionsexperimenten über nahezu den gesamten Raumbereich von 4π erlaubte. Die thermische Bewegung der Reaktionspartner begrenzte die Auflösung auf einige 10 meV, weswegen ein kalter Überschallgasstrahl ergänzt wurde, der die Reaktionspartner auf wenige Kelvin abkühlt und somit die Auflösung bis in den μeV -Bereich verbessert. Der Unterschied zwischen einem Reaktionsmikroskop und COLTRIMS besteht darin, daß nicht nur Ionen ortsaufgelöst detektiert werden, sondern ebenso die zugehörigen Elektronen.

Ein Reaktionsmikroskop zeichnet sich folglich dadurch aus, daß mit ihm kinematisch vollständige Messungen durchgeführt werden können, also der dreidimensionalen Impuls der beteiligten Stoßpartner einer Reaktion bestimmt werden kann. Im Gegensatz dazu wird in konventionellen TOF-Spektrometern lediglich die Energie bestimmt, noch dazu nur die Komponente in Detektionsrichtung. Da wir uns hier für Doppelionisation interessieren, handelt es sich bei der »Reaktion« im weitesten Sinne um den Photoeffekt, die »Stoßpartner« sind das Dikation und seine beiden Photoelektronen. Wegen Energie- und Impulserhaltung genügt es, lediglich den Impuls vom Ion und einem der beiden Elektronen zu messen; der Impuls des anderen Elektrons läßt sich dann, unter Beachtung des Photonenimpulses^{iii}, rechnerisch bestimmen. Wegen der

^{i}COLTRIMS: **C**old **T**arget **R**ecoil-**I**on **M**omentum **S**pectroscopy

^{ii}RIMS: **R**ecoil-**I**on **M**omentum **S**pectroscopy

^{iii}Der Photonenimpuls ist sehr klein. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten

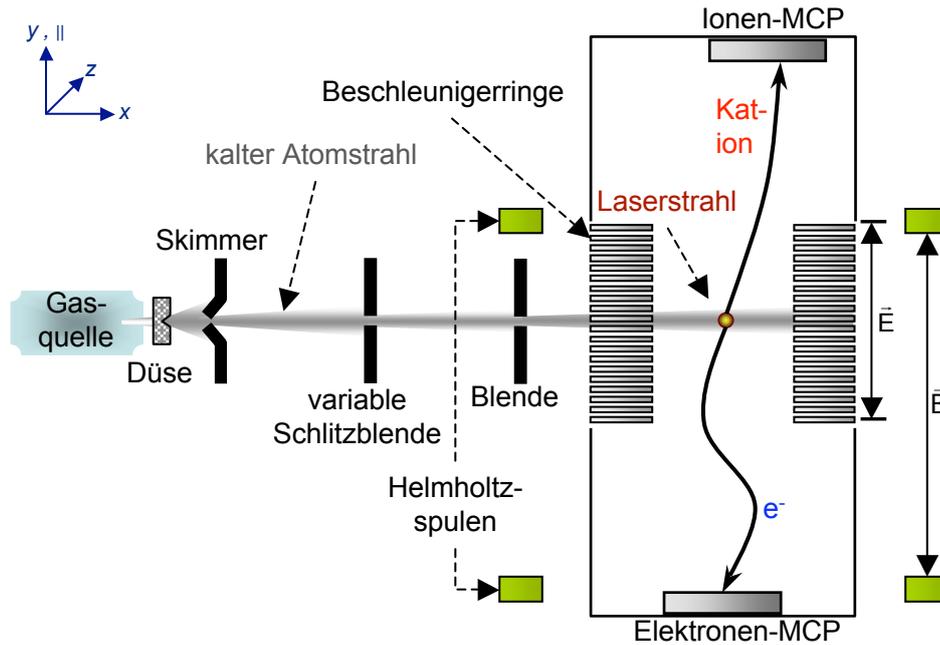


Abb. 4.1.: Reaktionsmikroskop. Von links nach rechts wird der kalte Überschallgasstrahl in die Wechselwirkungszone eingebracht, der Laser strahlt mit vertikaler Polarisierung senkrecht zur Zeichenebene ein. In der Wechselwirkungszone herrscht ein schwaches elektrisches Abzugsfeld ($< 5 \text{ V/cm}$), zudem auf der Elektronenseite ein homogenes magnetisches Führungsfeld ($< 200 \mu\text{T}$). Die auf Potential liegenden Beschleunigerringe schließen die gesamte Wechselwirkungszone ein und weisen lediglich kleine Aussparungen für den Laserstrahl auf. Die Beschleunigungsstrecke ist in jede Richtung 10 cm lang, die anschließende feldfreie Driftstrecke 20 cm für Elektronen und 10 cm für Ionen. Nicht eingezeichnet sind zusätzliche Helmholtzspulen, um externe \mathbf{B} -Felder zu kompensieren. Skimmer ($\varnothing = 500 \mu\text{m}$) und Blenden ($\varnothing = 20 \dots 500 \mu\text{m}$ bzw. $\varnothing = 5 \text{ mm}$) dienen neben der Kollimation des Gasstrahles vorwiegend als differentiellen Pumpstufe: in der Wechselwirkungszone herrscht ein Druck von $p < 3 \cdot 10^{-10} \text{ mbar}$. Weitere Details finden sich in [Ere05].

unterschiedlichen Dynamik der verschiedenen schweren Teilchen erfolgt die Messung für Ion und Elektron geringfügig verschieden.

Bevor geladene Teilchen gemessen werden können, muß selbstverständlich erst der Ionisationsprozeß erfolgen. Abbildung 4.1 zeigt den prinzipiellen Aufbau der gesamten Apparatur, so daß man einen Eindruck vom Ablauf bekommen kann. Die wesentlichen Teilkomponenten sind, von links nach rechts,

Experimente gilt $p_{\text{Photonen}} = n\hbar k < \Delta p$, d. h., der Photonenimpuls ist kleiner als das Auflösungsvermögen der Apparatur und kann vernachlässigt werden.

bzw. in der zeitlichen Reihenfolge, in der sie von den zu untersuchenden Atomen oder Molekülen durchlaufen werden, der *Überschallstrahl*, die *differenzielle Pumpstufe*, die *Wechselwirkungszone* mit Abzugs- und Führungsfeldern und die *MCPs*^{iv} zur orts- und zeitaufgelösten Detektion der Teilchen. Die einzige Bedingung an die zu untersuchende Atom- oder Molekülspezies ist die, daß sie unter Normbedingung als stabiles Gas vorliegt. Durch Expansion in einem Überschallstrahl wird dieses auf 5 . . . 15 K gekühlt [SM88] und in die eigentliche Wechselwirkungszone eingebracht. Verschiedene Skimmer und Blenden dienen als differentielle Pumpstufe, so daß der Druck dort im Bereich einiger 10^{-10} mbar liegt. Durch Rückreflexion an einem sphärischen Spiegel mit $f = 100$ mm wird der senkrecht zum Gasstrahl einlaufende Laserpuls in diesen fokussiert. Die Polarisation des Lasers ist linear und zeigt in Richtung der Detektoren^{v}. Der Fokus definiert die Wechselwirkungszone, hier erfolgt die (mehrfache) Ionisation. Die Anzahl der »aktiven« Atome pro Laserschuß läßt sich aus der Stärke des Gasstrahls (etwa $50 \mu\text{m}$ senkrecht zur Strahlrichtung) und dem Wechselwirkungsvolumen ($V = 2 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^3$) zu $N \leq 10$ abschätzen.

Das Prinzip, mit dem der Impuls (und nicht nur die kinetische Energie) der beteiligten Reaktanden gemessen werden kann, ist Folgendes: In einem bekannten Abstand y von der Wechselwirkungszone befindet sich ein MCP, welches den Zeitpunkt des eintreffenden Ions mißt. Aus der Flugzeit läßt sich die Geschwindigkeitskomponente in diese Richtung und somit, bei bekannter Teilchenmasse, Impuls und Energie errechnen. Um möglichst alle Ionen zu detektieren, müssen diese durch ein elektrisches Abzugsfeld \mathcal{E} in Richtung des MCPs beschleunigt werden. Flugzeit T_{Ion} und der Impuls p_{\parallel} in Richtung des Detektors hängen dann gemäß

$$T = -\frac{p_{\parallel}}{q\mathcal{E}} + \frac{\sqrt{2m}}{q\mathcal{E}} \sqrt{q\mathcal{E}l + \frac{p_{\parallel}^2}{2m}} + \frac{L\sqrt{2m}}{2\sqrt{q\mathcal{E}l + \frac{p_{\parallel}^2}{2m}}} \quad (4.1)$$

zusammen, mit den Driftlängen l (beschleunigt) und L (feldfrei) und der Ionenladung q . Um nun den Impuls p_{\perp} senkrecht zu p_{\parallel} zu erhalten, hat das MCP eine spezielle ortsempfindliche Anode in Form zweier gekreuzter Verzögerungsleitungen. Die aus dem MCP austretende Elektronenlawine trifft auf die Leitungen, und aus der Laufzeitdifferenz des Signals zu den beiden Enden der Leitungen wird jeweils die x - und z -Koordinate bestimmt. Ein Ion mit Impuls $p_{\perp} = 0$ trifft das MCP in der Mitte der Ionenverteilung bei (x_0, z_0) . Allgemein gilt dann für die x -Koordinate des Ionenimpulses

$$p_x = \frac{x - x_0}{T_{\text{Ion}}} m, \quad (4.2)$$

^{iv}MCP: **M**icro **C**hannel **P**late.

^{v}Diese Richtung wird im Folgenden als \parallel oder y bezeichnet

für die z -Koordinate Entsprechendes.

Um den Elektronenimpuls nach dem gleichen Prinzip zu messen, muß dieser Ansatz etwas erweitert werden. Das elektrische Abzugsfeld, welches benötigt würde, um selbst schnelle Elektronen noch über den vollen Raumbereich zu erreichen, wäre zu groß, als daß man noch von einer (nahezu) »feldfreien« Wechselwirkungszone reden könnte. Stattdessen wird ein parallel laufendes, schwaches, homogenes Magnetfeld verwendet, welches die Elektronen auf Kreisbahnen begrenzt, deren Radius nur von $\|B\|$ und $E_{\text{kin},\perp}$ abhängt. Das Analogon zu Gleichung (4.2) für den Elektronenimpuls lautet damit

$$|\mathbf{p}_\perp| \cdot 2 \left| \sin \frac{\omega_L T_e}{2} \right| = m_e \omega_L R, \quad (4.3)$$

mit der Lamor-Frequenz $\omega_L = eB/m_e$ und $R = \sqrt{(x - x_0)^2 + (z - z_0)^2}$. Für $R \neq 0$ existiert eine eindeutige Lösung dieser Gleichung.

Wegen der intrinsischen Totzeit der MCP-Konstruktion ist es nicht möglich, zwei kurz aufeinanderfolgende Ereignisse zu messen. Deshalb wird der Impuls des zweiten Elektrons nur berechnet und nicht direkt gemessen. Das apparative *Auflösungsvermögen* ist limitiert durch Inhomogenitäten der Führungs- und Abzugsfelder, sowie in \parallel -Richtung durch die Zeitauflösung der TOF-Messung, in \perp -Richtung durch die Ortsauflösung der Detektoren. Hier ergibt sich eine Unsicherheit $\Delta \mathbf{p}$ von einigen 0,1 a.u. (Ionen) bzw. einigen 0,01 a.u. (Elektronen).

4.1.2. NSDI diesseits der Ionisationsschwelle

Es wurden Experimente mit Atomen (Neon und Argon) zur nicht-sequentiellen Doppelionisation in linear polarisierten 35 fs-Laserpulsen durchgeführt, um das Verständnis der atomspezifischen Details des Ionisationsprozesses zu erweitern [ELR⁺03]. Nach dem bisherigen Verständnis der NSDI, ist, wie auch in Abs. 2.4.2 genauer ausgeführt, inelastische Elektron-Ion-Streuung der wesentliche Mechanismus zur Freisetzung des zweiten Elektrons. Um dies genauer zu überprüfen wurden die Experimente bei Laserintensitäten durchgeführt, bei denen die klassische Rückstoßenergie (vgl. Abs. 2.2.1 und 2.4.2) des Elektrons auf oder unter dem Schwellenwert der zur zweiten Ionisation ($A^+ \rightsquigarrow A^{++}$) notwendigen Energie^{vi} lag. Für $E_{\text{kin,max}} < I_p^+$ sollte die Stoßionisation klassisch betrachtet unmöglich werden. Vorhergehende integrale Experimente [WSD⁺94, SLW⁺98] zeigten jedoch kein unstetiges Verhalten der Ionenausbeute $|A^{++}| / |A^+|$ beim Unterschreiten dieser Schwelle, was angesichts der sonst ausgezeichneten Gültigkeit des semiklassischen 3-Stufen-Modelles überrascht. Es scheint, daß es einen graduellen Übergang im Ionisationsmechanismus gibt, oder aber das Modell in diesem Bereich unvollständig ist.

^{vi} $I_p^+(\text{Ar}) = 27,55 \text{ eV}$, $I_p^+(\text{Ne}) = 41,0 \text{ eV}$

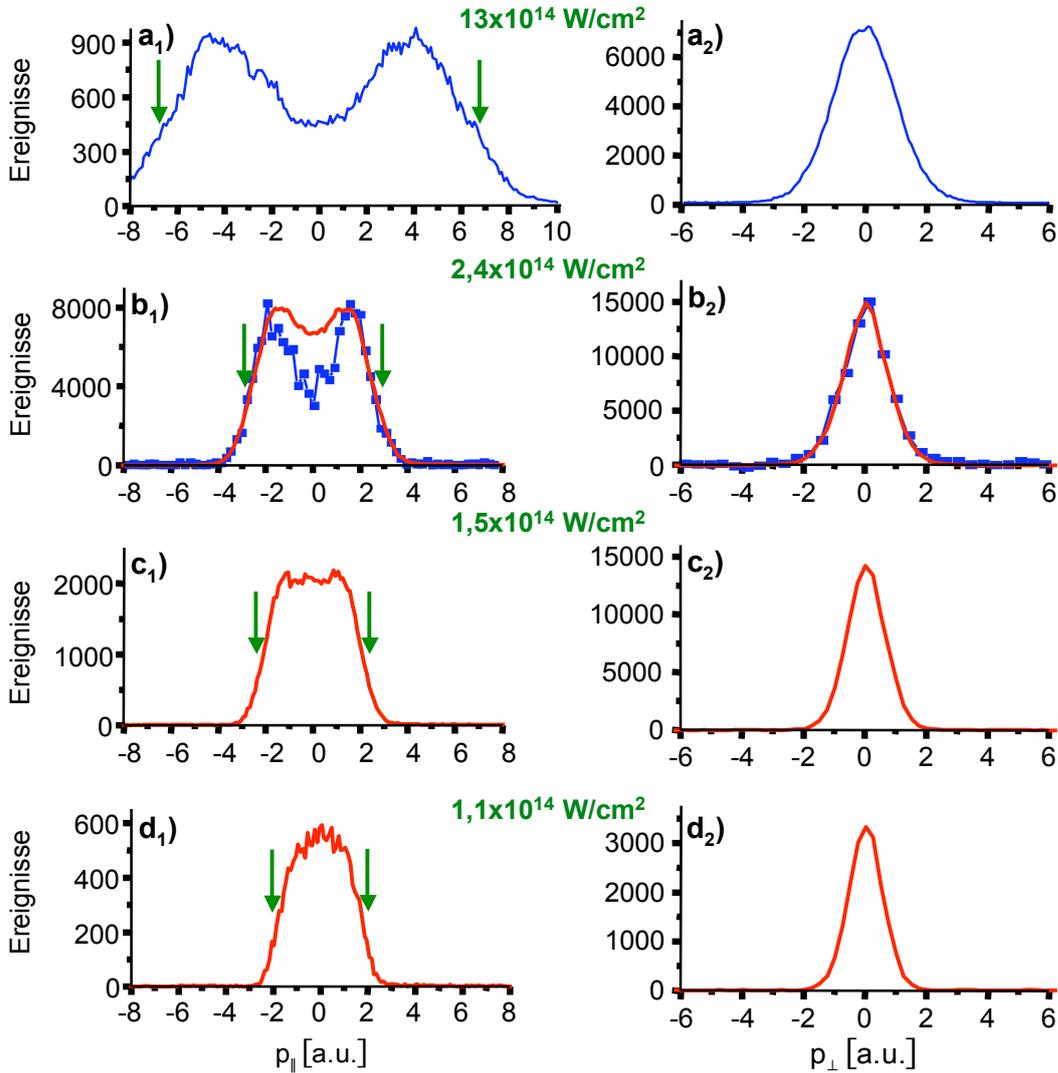


Abb. 4.2.: Impulsverteilung von Ar^{++} (rot) und Ne^{++} (blau) nach der NSDI bei verschiedenen Laserintensitäten (die höchste Intensität (a) ist aus [MFS⁺00] übernommen). Links die Impulsverteilung parallel zur Laserpolarisation (\parallel), rechts senkrecht dazu (\perp). In grün jeweils die Laserintensität in der Wechselwirkungszone, die entsprechenden Überschussenergien $E_{\text{kin,max}} - I_p^+$ sind bei Ne 200 eV (a) bzw. 4,5 eV (b) und bei Ar 18 eV (b), 1,9 eV (c) bzw. -7,2 eV (d). Die grünen Pfeile liegen bei $\pm 4\sqrt{U_p}$ (von oben nach unten: 6,79 a.u., 2,91 a.u., 2,36 a.u., 1,96 a.u.), dem klassisch erlaubten Maximalimpuls der Ionen. (Zur Orientierung: Gemäß Anhang A und $E = p^2/2m$ entspricht ein Elektronenimpuls von $p_{e^-} = 1$ a.u. einer kinetischen Energie von $E_{\text{kin},e^-} = 0,5$ a.u. = 13,61 eV)

4.1.2.1. Ionische Impulsverteilung

Abbildung 4.2 zeigt die Impulsverteilung der Ar^{++} - und Ne^{++} -Ionen nach dem NSDI-Prozeß bei verschiedenen Laserintensitäten^{vii}. Wegen der Energie- und Impulserhaltung entspricht dies jeweils der Summe der Impulse der beiden Photoelektronen. Die Impulsverteilungen parallel ($f(p_{\parallel})$ ^{viii}) und orthogonal ($f(p_{\perp})$ ^{ix}) zur Laserpolarisation sind separat aufgeführt. Auf die \perp -Verteilung hat die Zitterenergie U_p , die die geladenen Teilchen nach dem Ionisationsprozeß noch aus dem \mathcal{E} -Feld aufnehmen, keinen Einfluß. Bei hohen Energien erkennt man eine deutlich ausgeprägte symmetrische Doppelhockerstruktur in der \parallel -Verteilung. Anschaulich beschreibt dies, daß die beiden Elektronen den gleichen Impuls haben, insbesondere auch in die gleiche Richtung. Eine solche bimodale Struktur ist immer ein deutliches Indiz für instantane Stoßionisation.

Bei Ne^{++} ändert sich die Struktur von $f(p_{\parallel})$ nicht, wenn die Laserintensität und damit die Energie des rückkehrenden Elektrons von weit oberhalb der energetischen Schwelle (Abb. 4.2a), $E_{\text{kin,max}} - I_p^+(\text{Ne}) = 200 \text{ eV}$, [MFS+00]) bis nahe an diese heran (Abb. 4.2b), $E_{\text{kin,max}} - I_p^+(\text{Ne}) = 4,5 \text{ eV}$ verkleinert wird.

Für Ar^{++} ist die Situation eine andere: Schon bei Energien nahe der energetischen Schwelle (Abb. 4.2 (c), $E_{\text{kin,max}} - I_p^+(\text{Ar}) = 1,9 \text{ eV}$) ist die bimodale Struktur kaum noch zu erkennen und wandelt sich immer weiter zu einer schmaler werdenden Glockenkurve mit einem ausgeprägten Maximum bei $p_{\parallel} = 0$ um. Die Stoßionisation scheint hier bereits bei unerwartet hohen Energien in den Hintergrund zu treten.

Tatsächlich ist dies nicht der Fall, wie eine genauere Analyse von p_{\parallel} unter Berücksichtigung der Impulsinformationen der einzelnen Elektronen (Abs. 4.1.2.2) zeigt. Die identische Halbwertsbreite der Impulsverteilung von Ar^{++} und Ne^{++} bei gleicher Laserintensität (Abb. 4.2 b₁) suggeriert ebenfalls den gleichen Ionisationsmechanismus bei beiden Atomspezies. Die maximale Driftenergie, die die Elektronen (und somit auch das Ion) gemäß dem klassischen Rückstoßmodell aus dem Laserfeld erhalten können (Abs. 2.2.1 und 2.4.1) ergibt in atomaren Einheiten $|p_{\parallel}| \leq 4\sqrt{U_p}$. Dieser Maximalwert ist in Abb. 4.2 durch senkrechte Pfeile gekennzeichnet und entspricht sehr gut der Hälfte der Halbwertsbreite der Impulsverteilung.

^{vii}Die Laserintensität wurde einmal aus den Laserparametern (Pulslänge und -energie, Fokussierungsgeometrie) bestimmt, zum anderen aus der unabhängigen Analyse der aufgenommenen Elektronenspektren. So weisen die angegebenen Intensitätswerte eine hohe Zuverlässigkeit auf.

^{viii}Hierbei handelt es sich um eine Projektion des gesamten Impulsraumes ($\mathbf{p} = (p_{\perp,x}, p_{\perp,z}, p_{\parallel})$) auf die Polarisationsachse: $f(p_{\parallel}) = \int f(\mathbf{p}) d^2\mathbf{p}_{\perp}$

^{ix}Hierbei handelt es sich um eine Projektion der Impulsverteilung $f(\mathbf{p})$ auf die Laserpropagationsrichtung z (alle Richtungen der \perp -Ebene sind physikalisch gleichwertig, jedoch sind die Atome aus dem Überschallstrahl senkrecht zur Driftrichtung x am kältesten): $f(p_{\perp}) = \int f(\mathbf{p}) dp_{\parallel} dp_{\perp,x}$

Die zur Polarisation senkrechte Impulsverteilung $f(p_{\perp})$ hängt nicht von der Beschleunigung der geladenen Teilchen im elektrischen Feld *nach* der Ionisation ab und erlaubt deshalb einen direkten Einblick unmittelbar in den Ionisationsprozeß. Bei Ar^{++} und Ne^{++} ist $f(p_{\perp})$ bei gleicher Laserintensität praktisch ununterscheidbar. Dies zeigt, daß die Impulsverteilung nicht vom Anfangszustand abhängt, aus dem das Elektron geboren wird^{x}.

Unabhängig von der Überschußenergie ist $f(p_{\perp})$ immer eine strukturlose, schmale, gaußförmige Verteilung. Die Halbwertsbreite hiervon skaliert proportional^{xi} zu $\sqrt[4]{I} = \sqrt{\mathcal{E}_0}$. Dies ist erstaunlich, denn gemäß der klassischen Rückstoßtheorie würde man erwarten, daß die Breite der Verteilung mit der Wurzel der Überschußenergie $\sqrt{E_{\text{kin,max}} - I_{\text{p}}^+}$ skaliert^{xii}, also linear proportional zum elektrischen Feld \mathcal{E}_0 . Offenbar wird die Breite der Verteilung nicht von der Energie des Rückstoßelektrons bestimmt. Die $\sqrt{\mathcal{E}_0}$ -Abhängigkeit der Halbwertsbreite erinnert jedoch an die Elektronenimpulsverteilung bei quasistatischer Feldionisation [DK91]:

$$f(p_{\perp}) = \omega_0 \exp\left(-\frac{\sqrt{2I_{\text{p}}} p_{\perp}^2}{\mathcal{E}_0}\right), \quad (4.4)$$

mit der zugehörigen Halbwertsbreite

$$\text{FWHM}(\text{Gl. 4.4}) = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt[4]{2I_{\text{p}}}} \sqrt{\mathcal{E}_0}. \quad (4.5)$$

In diesem Modell tunnelt ein Elektron durch die Potentialbarriere, die aus der Superposition vom äußeren Laserfeld und dem Coulombfeld entsteht. Das ähnliche Verhalten von $f(p_{\perp})$ bei der einfachen Ionisation und bei der Doppelionisation hier ist nicht zufällig. Im Gegenteil besagt es, daß das elektrische Feld zum Zeitpunkt des Rückstoßes eine entscheidende Rolle spielt. Dies kann man am einfachsten unter der Annahme verstehen, daß das Rückstoßelektron nicht genügend Energie zur Stoßionisation des zweiten Elektrons mitbringt. Entsteht dennoch ein zweifach geladenes Ion, so ist dies dadurch zu erklären, daß aus dem angeregten Stoßkomplex^{xiii} das zweite Elektron (oder beide) durch die vom äußeren Feld abgesenkte Potentialbarriere tunnelt. Dieses Szenario wurde in [SE01] diskutiert: Der orthogonale Impuls wird ähnlich wie bei der einfachen Ionisation hauptsächlich durch das momentane äußere Feld bestimmt. Die

^{x}Aus der (2p)-Schale bei Neon, aus der (3p)-Schale bei Argon.

^{xi}Lediglich der Meßpunkt bei der kleinsten Lichtintensität von $0,9 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ liegt geringfügig unterhalb der entsprechenden Ausgleichskurve. Das kann daran liegen, daß hier bereits merklich viele Ereignisse nicht durch Stoßionisation hervorgerufen sind. Vgl. hierzu auch die Diskussion in Abs. 4.1.2.2.

^{xii}Der Impuls ist die Wurzel der Energie: $|p| = \sqrt{2mE}$.

^{xiii}Bei dem Stoßkomplex handelt es sich entweder um ein angeregtes Ion nach Stoßanregung, oder um ein hoch angeregtes Atom nach Elektroneneinfang.

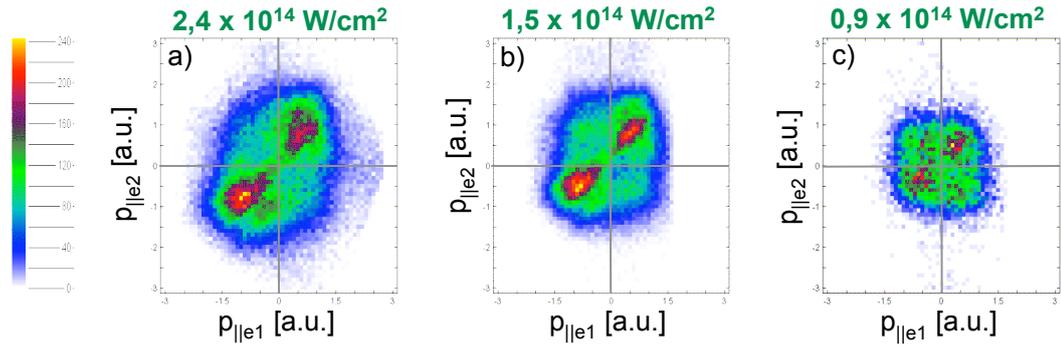


Abb. 4.3.: Impulskorrelation der beiden Photoelektronen nach der NSDI von Ar bei verschiedenen Laserintensitäten. Die Farbkodierung beschreibt die Anzahl der gemessenen Elektronenpaare mit den jeweiligen Impulsen.

getunnelten Elektronen haben bevorzugt kleine Impulse. Ähnlich wie in unseren Messungen beobachtet, ist eine $\sqrt{\mathcal{E}_0}$ -Abhängigkeit von FWHM ($f(p_{\perp})$) zu erwarten.

Einen genaueren Einblick in den Ionisationsprozeß und weitere Möglichkeiten zur Verifikation der hier aufgestellten Thesen kann man aus der vollständigen Analyse der Elektronenkorrelation gewinnen.

4.1.2.2. Elektronische Impulskorrelation

Da das verwendete Elektronenspektrometer hochaufgelöste, differentielle Messungen der Elektronenkorrelationen zuläßt, ist es möglich die Besonderheiten der Impulsverteilung bei Ar^{++} noch genauer zu analysieren. Abbildung 4.3 zeigt für Ar die Impulsverteilung (p_{\parallel}) der beiden Photoelektronen^{xiv} in Falschfarbendarstellung. Die orangenen (hohe Zählrate) Keulen entsprechen der bimodalen Struktur im vorigen Absatz und sind ein deutliches Indiz für Rückstoßionisation [WGW⁺00, FMF⁺01].

Nun ist es auch möglich, das Verschwinden der bimodalen Struktur im letzten Absatz genauer zu analysieren. Selbst bei der kleinsten Laserintensität von $0,9 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, die bereits deutlich unter der Schwelle zur klassischen Rückstoßionisation liegt, sind die Keulen in der Elektronenkorrelationsverteilung noch auszumachen. Abbildung 4.4 zeigt einen Schnitt durch die Korrelationsverteilungen entlang der Diagonalen. Die dicken, blauen Kurven entsprechen der Summenimpulsverteilungen aus Abs. 4.1.2.1, allerdings eingeschränkt auf den Bereich $p_{\parallel}(e_1) \approx p_{\parallel}(e_2)$. Im Gegensatz zu Abb. 4.2 bleibt hier die Doppelhöckerstruktur bei allen Lichtintensitäten erhalten – selbst bei klassisch verbotenen Intensitäten findet noch eindeutig Stoßionisation statt. Der

^{xiv}Nur ein Photoelektron wurde gemessen, der Impuls des zweiten wurde mittels Impulserhaltung aus dem Impuls des Ar^{++} -Ions berechnet.

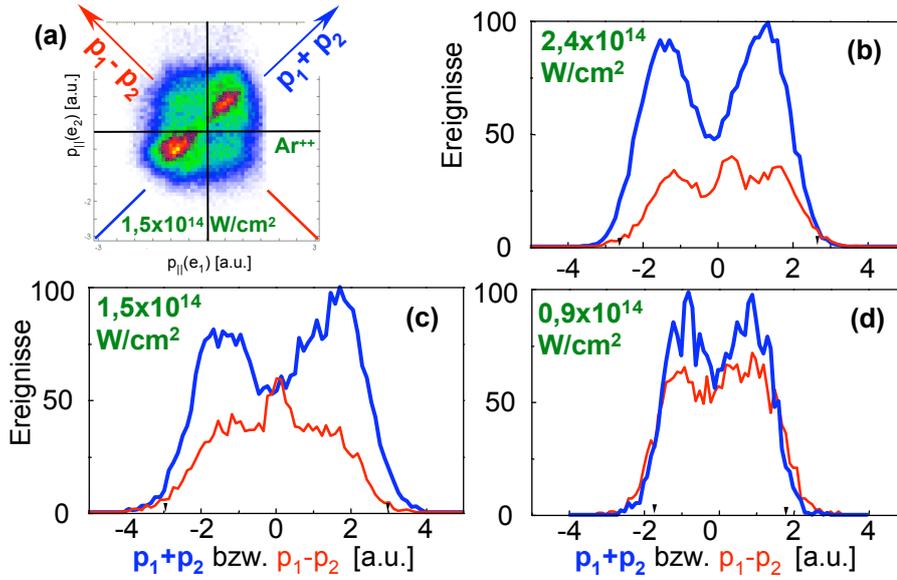


Abb. 4.4.: Impulsverteilung von Ar^{++} nach der NSDI bei verschiedenen Laserintensitäten. In blau die Summenimpulsverteilung $p_{\parallel}(e_1) + p_{\parallel}(e_2)$ ähnlich in Abb. 4.2, allerdings nur unter Beachtung eines schmalen Bereiches um $p_{\parallel}(e_1) \approx p_{\parallel}(e_2)$. Die dünnen roten Kurven zeigen eine solch selektive Projektion für $p_{\parallel}(e_1) - p_{\parallel}(e_2)$.

Grund dafür, daß dies bei der integralen Darstellung nicht sichtbar ist, liegt in der mit schwindender Lichtintensität wachsenden Anzahl von Ereignissen, die antikorrelierte Elektronenpaare generieren. In Abb. 4.4 ist hierzu auch die Projektion $p_{\parallel}(e_1) - p_{\parallel}(e_2)$ für $p_{\parallel}(e_1) \approx p_{\parallel}(e_2)$ (dünne, rote Kurve) dargestellt.

Hieraus kann man erkennen, daß es neben der Rückstoßionisation noch mindestens einen zweiten Ionisationskanal geben muß. Dieser nimmt bei niedrigen Lichtintensitäten an Bedeutung zu. Hierbei handelt es sich vermutlich um Elektronenstoßanregung mit anschließender Feldionisation bzw. Feldtunnelionisation [FMF⁺01]. Einen abrupten Übergang zwischen den beiden Ionisationsmechanismen gibt es jedoch nicht.

4.1.2.3. Klassische Rechtfertigung der Ionisation diesseits der Schwelle

Wie in den letzten beiden Abschnitten gesehen, gibt es entgegen der Annahme des klassischen Rückstoßmodells keinen abrupten Effekt bei der NSDI, wenn man die Laserintensität soweit absenkt, daß die klassische Rückstoßenergie des Elektrons unter die zweite Ionisationsschwelle fällt. Atomspezifisch ist bei Ne in dem beobachteten Energiebereich ausschließlich Rückstoßionisation zu beobachten, wohingegen bei Ar ein zweiter Ionisationsprozeß existiert, der bei kleinen Energien an Bedeutung gewinnt. Hierbei handelt es sich höchstwahrscheinlich um Feldionisation des angeregten Stoßkomplexes.

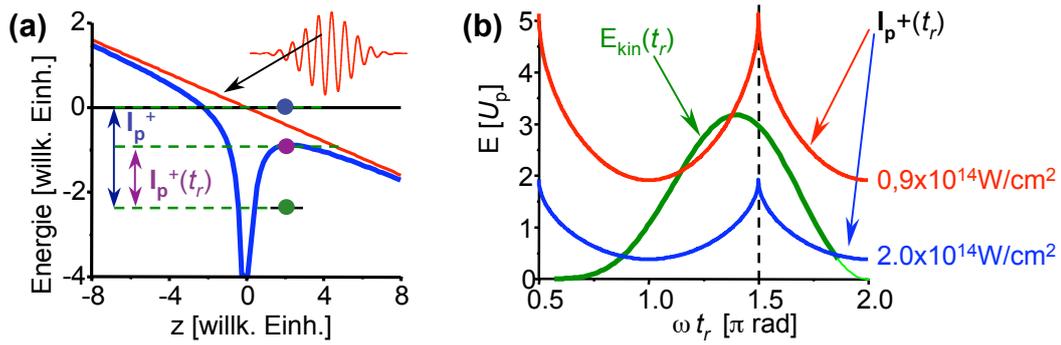


Abb. 4.5.: (a) Prinzipskizze, wie das elektrische Feld des Laserpulses das Ionisationspotential erniedrigt. (b) Kinetische Energie des rückkehrenden Elektrons $E_{\text{kin}}(t_r)$ als Funktion der Zeit und die zugehörige Ionisationsschwelle $I_p^+(t_r)$ bei zwei verschiedenen Laserintensitäten. Die ungestörte Ionisationsschwelle findet sich jeweils bei $t_r = 1,5\pi/\omega$, da dort das elektrische Feld seinen Nulldurchgang hat.

Wie aber läßt sich das völlige Fehlen einer Schwelle erklären? Tatsächlich ist es auch hier notwendig, das äußere Feld zum Zeitpunkt des Rückstoßes t_r zu betrachten, da es für gewöhnlich von Null verschieden ist. Durch das Laserfeld wird das Coulombpotential abgesenkt, so daß sich in atomaren Einheiten effektiv eine zeitabhängige Ionisationsenergie

$$I_p^+(t_r) = I_{p,0}^+ - 2^{\frac{3}{2}} \sqrt{|\mathcal{E}|} = I_{p,0}^+ - 2\sqrt{2 \mathcal{E}_0 |\cos(\omega t_r)|} \quad (4.6)$$

ergibt (vgl. Abb. 4.5a). Da der Puls aus vielen Zyklen besteht, ist die Annahme einer konstanten Amplitude der Einhüllenden während des Ionisationsprozesses gerechtfertigt. Ein ähnliches Modell wurde in [vHB00] verwendet, um das Fehlen einer Schwelle bei integralen $|\text{He}^{++}| / |\text{He}^+|$ -Messungen zu verstehen.

Abbildung 4.5b) zeigt die kinetische Energie des wiederkehrenden Elektrons in Einheiten der ponderomotiven Energie U_p , sowie die momentanen Ionisationspotentiale gemäß (4.6) für verschiedene Laserintensitäten. Selbst bei der kleinsten gemessenen Intensität gibt es Werte von t_r für die $E_{\text{kin}}(t_r) > I_p^+(t_r)$ gilt. Somit ist direkte Stoßionisation innerhalb dieses erweiterten Modells auch klassisch erlaubt. Eine quantenmechanische Berechnung mittels des S -Matrix-Formalismus im quasistatischen Fall und bei ausschließlicher Betrachtung der Rückstoßionisation, liefert ein ähnliches Resultat [KBRS00].

4.1.3. Einfluß der Molekülstruktur auf die NSDI

Haben ein Atom und ein Molekül das gleiche Ionisationspotential, so bezeichnet man sie als *Partner*. Beispiele hierfür sind $\text{Ar}/\text{N}_2^{\{\text{xv}\}}$ und $\text{Xe}/\text{O}_2^{\{\text{xvi}\}}$. Die Ionisationswahrscheinlichkeit von Atomen ist grundsätzlich höher als die der zugehörigen Partnermoleküle; der Grad dieser Ionisationsunterdrückung variiert jedoch merklich für verschiedene Atomspezies [TCC96, GLNG98, HVCR00]. Faisal *et al.* haben dieses Verhalten auf die Symmetrieeigenschaften der Wellenfunktion des Valenzorbitals (bindend oder antibindend) zurückgeführt [MBBF00, MBBCF01] (vgl. hierzu auch Abs. 4.1.3.4). Messungen von ATI-Spektren konnten dies bestätigen [GPC⁺01]. Dort werden ähnliche Spektren bei Ar und N_2 (σ_g -bindend) beobachtet, wohingegen die Spektren von O_2 (π_g -antibindend) bei hohen und niedrigen Energien gegenüber denen von Xe stark unterdrückt erscheinen.

Ähnlich den Atomen, zeigen viele Moleküle in kurzen, instensiven Laserpulsen eine unerwartet hohe Ausbeute an doppelt geladenen Ionen [CH98, GG01]. Dies suggeriert, daß auch hier die Doppelionisation über einen nicht-sequentiellen Kanal verläuft. Integrale Messungen bieten jedoch zu wenig Informationen, um diese These abschließend zu bestätigen. Elliptizitätsabhängige Messungen an C_6H_6 legen wegen der beobachteten Polarisationsabhängigkeit als Mechanismus der NSDI die Rückstoßionisation nahe [BRVC01], ähnlich wie dies auch bei Atomen in dem entsprechenden Intensitätsbereich der Fall ist (vgl. Abs. 2.4.2). Dieser Mechanismus konnte kürzlich auch bei den einfachen Molekülen H_2 [NLH⁺02] und D_2 [SLWL⁺03] identifiziert werden, ebenfalls unter Zuhilfenahme der Elliptizität der Laserpolarisation.

In diesem Kapitel werden differentielle Messungen zur Doppelionisation von N_2 und O_2 vorgestellt und analysiert [ELR⁺04]. Durch die Information über den dreidimensionalen Impuls beider Elektronen sollte es möglich sein, den zugrundeliegenden Ionisationsprozeß eindeutig zu identifizieren. Insbesondere kann, durch einen Vergleich der unter identischen Bedingungen aufgenommenen Impulsverteilungen der zugehörigen Partneratome, der Einfluß der Orbitalsymmetrie des Valenzelektrons beobachtet werden. Zur Analyse der Daten muß das semiklassische 3-Stufen-Modell aus Abs. 2.2.1 um den Parameter der Orbitalsymmetrie erweitert werden.

4.1.3.1. Ionische Impulsverteilung

Die Spektren sind bei Intensitäten von $1,1 \dots 2,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ aufgenommen, also in einem Bereich, bei dem die NSDI dominiert [GLNG98, CH00]. Detektiert werden hierbei nur Ereignisse, bei denen (metastabile) Dikationen den Ionendetektor erreichen. Diese können lediglich unter bestimmte internuklea-

$\{\text{xv}\} I_p(\text{Ar}) = 15,76 \text{ eV}, I_p(\text{N}_2) = 15,58 \text{ eV}; I_p(\text{Ar}^+) = 27,6 \text{ eV}, I_p(\text{N}_2^+) = 27,1 \text{ eV}.$
 $\{\text{xvi}\} I_p(\text{Xe}) = 12,13 \text{ eV}, I_p(\text{O}_2) = 12,07 \text{ eV}; I_p(\text{Xe}^+) = 21,21 \text{ eV}, I_p(\text{O}_2^+) = 24,14 \text{ eV}.$

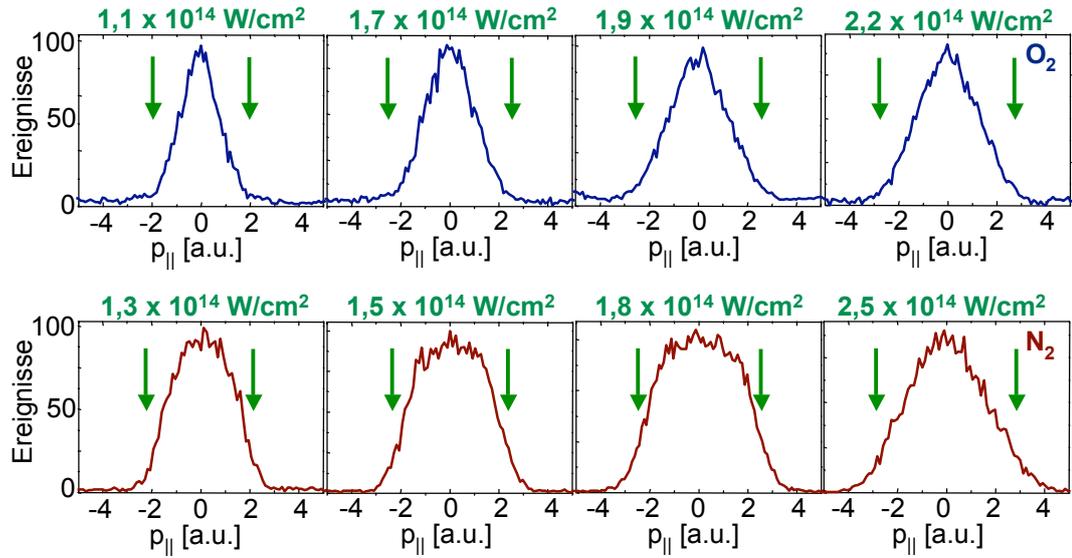


Abb. 4.6.: Die Impulsverteilung $f(p_{\parallel})$ der Molekül-Dikationen von O_2 (oben) und N_2 (unten). Die jeweilige Laserintensität ist angegeben. Die grünen Pfeile liegen bei $4\sqrt{U_p}$.

ren Abstände entstehen [WB86], so daß die longitudinale Molekülschwingung während des Laserpulses quasi »eingefroren« erscheint. Zum Ausrichten der Moleküle sind die 35-fs-Laserpulse zu kurz [DPL00]^{xvii}.

Analog zu Abb. 4.4 zeigt Abb. 4.6 die Impulsverteilung $f(p_{\parallel})$ der N_2^{++} - und O_2^{++} -Ionen nach dem NSDI-Prozeß parallel zur Laserpolarisation^{xviii}. Die Signatur der Rückstoßionisation sollte sich in einer charakteristischen Doppelhöckerstruktur und in einer halben Halbwertsbreite der Impulsverteilung von $4\sqrt{U_p}$ niederschlagen. Keines dieser Phänomene kann beobachtet werden: Die Verteilungen sind weitestgehend gaußförmig, lediglich N_2 folgt bei niedrigen Intensitäten einer höheren Verteilung und weist ein um Null zentriertes Plateau auf. Die Halbwertsbreiten der Verteilungen sind systematisch kleiner als $2 \cdot 4\sqrt{U_p}$. Für N_2 liegen sie bei etwa 85%^{xix}, für O_2 bei 50% des klassisch erwarteten Wertes.

Eine geringfügige Abweichung von der $4\sqrt{U_p}$ -Kurve beim Stickstoff ist

^{xvii}Durch das laserinduzierte Dipolmoment richten sich Moleküle in Laserfeldern aus, wenn diese lange genug wirken. Der Ionisationsprozeß wird merklich von der Molekülorientierung relativ zum Laserfeld beeinflusst [BR99]. Sind die Pulse, so wie in diesem Fall, zum Ausrichten zu kurz, so muß man von zufällig angeordneten Molekülachsen ausgehen.

^{xviii}Hierbei handelt es sich um eine Projektion des gesamten Impulsraumes ($\mathbf{p} = (p_{\perp,x}, p_{\perp,z}, p_{\parallel})$) auf die Polarisationsachse des Lasers: $f(p_{\parallel}) = \int f(\mathbf{p}) d^2\mathbf{p}_{\perp}$.

^{xix}Einzig die Messung bei der höchsten Laserintensität von $2,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ weicht von diesem Trend ab. Hier liegt die Halbwertsbreite bei nur noch 50%.

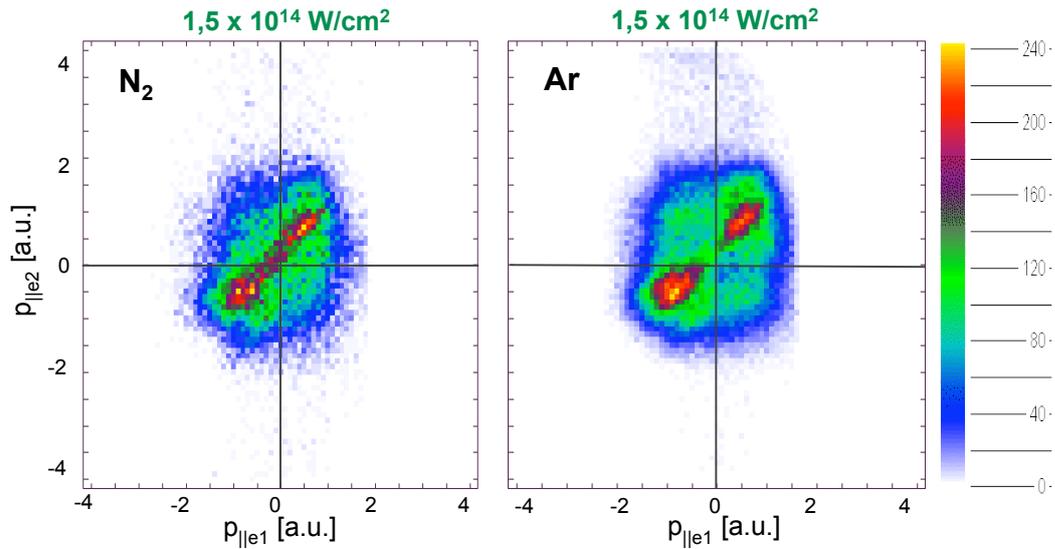


Abb. 4.7.: Impulskorrelation der beiden Photoelektronen nach der NSDI von N_2 (*links*). Zum Vergleich das gleiche Bild von Ar (*rechts*) bei derselben Laserintensität. Die Farbkodierung beschreibt die Anzahl der gemessenen Elektronenpaare mit den jeweiligen Impulsen.

nicht überraschend. Dies zeigt, daß neben dem dominierenden Ionisationskanal durch instantane Rückstoßionisation noch weitere Ionisationskanäle existieren. Das starke Abweichen beim Sauerstoff wird im folgenden Abschnitt noch genauer untersucht. Gleiches gilt für die fehlende Doppelhöckerstruktur. Hier konnte man bereits in Abs. 4.1.2 erfahren, daß die differentielle Elektronenkorrelation Licht ins Dunkel zu bringen vermag.

4.1.3.2. Elektronische Impulskorrelation

Die differentiellen Messungen der Elektronenkorrelationen sollten weitere Aufschlüsse über den Ionisationsprozeß liefern. Die Abb. 4.7 und 4.8 zeigen für N_2 und O_2 die Impulsverteilung ($p_{||}$) der beiden Photoelektronen^{xx} bei verschiedenen Laserintensitäten in Falschfarbendarstellung.

Betrachtet man die Daten für N_2 , so erkennt man ein ähnliches, wenn auch nicht identisches Bild, wie bei Ar: Die Hauptdiagonale ist deutlich ausgeprägt, d. h., die Elektronenpaare erhalten bevorzugt den gleichen Impuls – das Hauptindiz für instantane Rückstoßionisation [WGW⁺00, FMF⁺01]. Ähnlich wie bei Ar kann davon ausgegangen werden, daß die Elektronenpaare senkrecht zur Hauptdiagonalen auf Rückstoßanregung mit folgender Feldionisation zurückzuführen sind [FMF⁺01]. Die Elektronen mit $p_{||}(e_1) = p_{||}(e_2) \approx 0$ sind nur bei N_2 zu beobachten, nicht aber beim Partneratom Ar. In Abs. 4.1.3.4 wird

^{xx}Nur ein Photoelektron wurde gemessen, der Impuls des zweiten wurde aus dem Impuls des Dikations bestimmt.

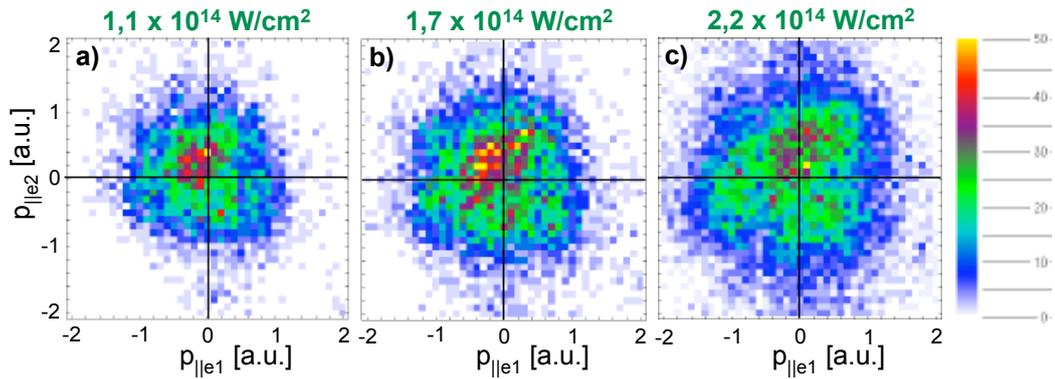


Abb. 4.8.: Impulskorrelation der beiden Photoelektronen nach der NSDI von O_2 bei verschiedenen Laserintensitäten. Die Farbkodierung beschreibt die Anzahl der gemessenen Elektronenpaare mit den jeweiligen Impulsen.

sich erweisen, daß es sich auch hierbei um nichtelastische Rückstoßionisation handelt.

Für O_2 ergibt sich ein anderes Bild. Die klassischen Indizien für instantane Rückstoßionisation fehlen völlig. Bei allen gemessenen Intensitäten beobachtet man eine um $p_{||} \approx 0$ zentrierte Impulsverteilung ohne auffällige Struktur. Dies deutet auf einen sequentiellen Ionisationskanal hin, was aber im Widerspruch zum gewählten Intensitätsbereich steht, in dem gemäß integralen Messungen NSDI zu erwarten ist [GLNG98]. Eine andere Möglichkeit besteht darin, daß die Molekülstruktur die Impulskorrelation des Endzustandes signifikant verändert. Dies wird im folgenden Absatz durch Simulationen genauer untersucht.

Zusammenfassend kann man sagen, daß der Hauptionisationsmechanismus beim Stickstoff offensichtlich instantane Rückstoßionisation ist. Im Gegensatz zum Partneratom Ar werden jedoch sehr viele Elektronen mit nahezu verschwindendem Impuls generiert. Der Einfluß der Molekülstruktur beim Sauerstoff macht sich deutlich stärker bemerkbar als beim Stickstoff. Die »klassischen« Effekte der NSDI werden völlig verdeckt. Um dies zu verstehen, ist eine Erweiterung des semiklassischen 3-Stufen-Modells notwendig.

4.1.3.3. Modellrechnung für sequentielle Ionisation

Um zu klären, ob bei Sauerstoff ein sequentieller Ionisationsmechanismus greift, wie die Form der Korrelationsmessung suggeriert, wird hier ein solcher Ionisationsprozeß modelliert und mit den gemessenen Daten verglichen. Das semiklassische Modell beruht auf der KFR-Näherung und ähnelt der Berechnung von SMIRNOV *et al.* für molekularen Wasserstoff [SK98]. Die Symmetrie der Grundzustandsorbitale der Valenzelektronen wird berücksichtigt, wenn auch

simplifiziert. Um einen Vergleich mit den Meßdaten zu ermöglichen, wird die Ausrichtung der molekularen Achsen als zufällig angesetzt und entsprechend gemittelt. Wie schon zuvor bemerkt, kann der internukleare Abstand hier als konstant angenommen werden.

Bei sequentieller Ionisation sind die beiden Impulsverteilungen $f_1(\mathbf{p}(e_1))$ und $f_2(\mathbf{p}(e_2))$ unabhängig, der Summenimpuls $\mathbf{p} = \mathbf{p}(e_1) + \mathbf{p}(e_2)$ ergibt sich folglich aus der Faltung der beiden Verteilungen:

$$f(\mathbf{p}) = \int f_1(\mathbf{p}(e_1)) f_2(\mathbf{p}(e_2)) \delta^3(\mathbf{p} - \mathbf{p}(e_1) - \mathbf{p}(e_2)) d^3\mathbf{p}(e_1) d^3\mathbf{p}(e_2). \quad (4.7)$$

Zum Vergleich mit den Daten aus Abb. 4.6 sind wir an den Komponenten parallel zur Laserpolarisation interessiert:

$$f(p_{\parallel}) = \int f(\mathbf{p}) d^2\mathbf{p}_{\perp} \stackrel{(4.7)}{=} \int f_1(\mathbf{p}(e_1)) f_2(\mathbf{p} - \mathbf{p}(e_1)) d^3\mathbf{p}(e_1) d^2\mathbf{p}_{\perp}. \quad (4.8)$$

Gemäß [DK91] und [GPC⁺01] ergibt sich für O_2 die Impulsverteilung

$$f_1(\mathbf{p}(e_1)) = r_1 \exp\left(-\frac{(2I_p)^{2/3} \omega^2}{3 \mathcal{E}^3} p_{\parallel}^2(e_1) - \frac{\sqrt{2I_p}}{\mathcal{E}} p_{\perp}^2(e_1)\right) \sin^2\left(\frac{\mathbf{p}(e_1) \cdot \mathbf{R}}{2}\right) \quad (4.9)$$

und analog für O_2^+

$$f_2(\mathbf{p}(e_2)) = r_2 \exp\left(-\frac{(2I_p^+)^{2/3} \omega^2}{3 \mathcal{E}^3} p_{\parallel}^2(e_2) - \frac{\sqrt{2I_p^+}}{\mathcal{E}} p_{\perp}^2(e_2)\right) \sin^2\left(\frac{\mathbf{p}(e_2) \cdot \mathbf{R}}{2}\right). \quad (4.10)$$

Hier sind ω die Kreisfrequenz des Lasers, \mathcal{E} die elektrische Feldstärke, I_p das Ionisierungspotential von O_2 , I_p^+ das von O_2^+ , r_1 und r_2 die jeweiligen Ionisationsraten und \mathbf{R} der Verbindungsvektor der beiden Atomkerne. Der Sinusterm steht für das antibindende Molekülorbital vom Sauerstoff. Diese Verteilungen kann man nun in Gl. (4.8) einsetzen und analytisch integrieren. Abschließend bleibt noch die Mittelung über alle möglichen Orientierungen von \mathbf{R} :

$$\bar{f}(p_{\parallel}) = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} f(p_{\parallel}) \sin(\vartheta) d\vartheta d\varphi. \quad (4.11)$$

Abbildung 4.9 zeigt die hieraus resultierende Verteilung bei unseren experimentellen Parametern und stellt sie den Meßdaten aus Abb. 4.6 gegenüber. Man erkennt deutlich, daß die berechnete Verteilung zu schmal ist. Dies ist umso dramatischer, als daß das Modell die Verteilungsbreite typischerweise überschätzt^{xxi}.

^{xxi} Dies ergibt sich aus dem Vergleich von berechneten und gemessenen Impulsverteilungen bei einfacher Ionisation.

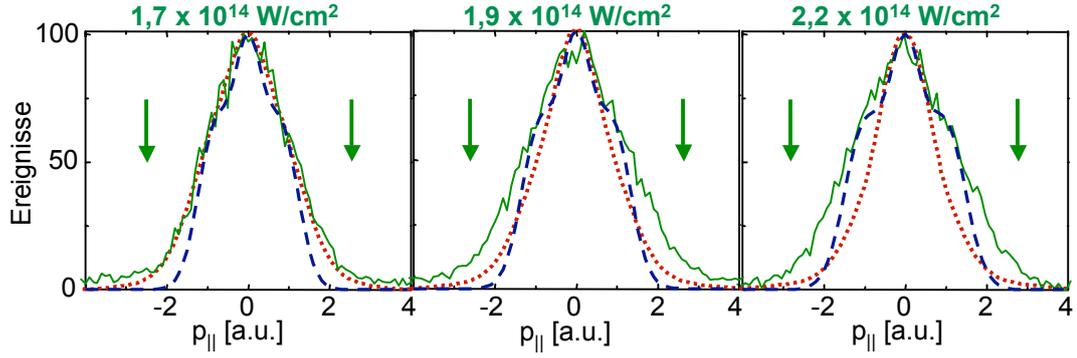


Abb. 4.9.: Die Impulsverteilung $\bar{f}(p_{||})$ der Molekül-Dikationen (O_2^{++}) gemäß semiklassischen Berechnungen. Die *blauen, gestrichelte Kurven* unter der Annahme eines sequentiellen Ionisationskanales, die *gepunkteten, roten Kurven* gemäß Abs. 4.1.3.4 unter Beachtung der Symmetrieeigenschaften der Molekülorbitale. Die *dünnen, grünen Kurven* sind zum Vergleich die Meßdaten. Die jeweilige Laserintensität ist angegeben, die grünen Pfeile zeigen die Position von $4\sqrt{U_p}$.

Hieraus kann man schließen, daß die Doppelionisation in dem untersuchten Intensitätsbereich auch für O_2 in weiten Teilen nicht sequentiell abläuft. Um zu klären, wie die untypischen Elektronenkorrelationen entstehen, wird im nächsten Abschnitt das semiklassische Rückstoßmodell um Faktoren für die Orbitalsymmetrie erweitert. Es wird sich zeigen, daß daraus eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Spektren resultiert.

4.1.3.4. Klassisches Modell für NSDI mit Erweiterung für Moleküle

Nachdem bereits dargestellt wurde, daß die Doppelionisation hier vorwiegend nicht sequentiell verläuft, bleibt noch zu klären, welches der dominante Ionisationsmechanismus ist. Hierzu nehmen wir an, daß es sich dabei um instantane Rückstoßionisation handelt und überprüfen die Vorhersagen des entsprechenden Modells mit den Meßdaten.

Die Berechnung basiert auf einem klassischen Analogon des quantenmechanischen S -Matrix-Formalismus für Rückstoßdoppelionisation [FLBS04, FSLB04]. Hiernach gilt für die Wahrscheinlichkeit der Doppelionisation

$$|M(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2)|^2 = \int r(\tau) |V_{\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \mathbf{k}}|^2 \cdot \delta\left(E_{\text{kin}}(t_r) - I_p^+(t_r) - \sum_{i=1}^2 \frac{(\mathbf{p}_i - \mathbf{A}(t_r))^2}{2}\right) d\tau, \quad (4.12)$$

mit $\mathbf{p}_i \equiv \mathbf{p}(e_i)$ für $i \in \{1,2\}$: Endzustandsimpuls, r : ADK-Tunnelrate aus [ADK87], \mathbf{A} : Vektorpotential^{xxii}, $t_r = t_r(t_0)$: Stoßzeitpunkt des rückkehrenden Elektrons, $I_p^+(\tau)$: modifiziertes Ionisationspotential (4.6). Der Formfaktor $V_{\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \mathbf{k}}$ muß nun an die Molekülstruktur angepaßt werden. Diesen kann man beschreiben durch das Produkt aus den Faktoren $g_1(\mathbf{k})$ und $g_2(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \mathbf{k})$, die jeweils die Ionisation des ersten Elektrons und den inelastischen Rückstoßprozeß beschreiben; \mathbf{k} ist hierbei der Impuls des ersten Elektrons vor dem Stoß.

Die Wellenfunktion des Moleküls wird mittels der LCAO-Näherung^{xxiii} für bindende (σ_g) und antibindende (σ_u) Molekülorbitale berechnet. Zwar weist O_2 ein π_g -Orbital auf, zum Test des Einflusses der Orbitalsymmetrie auf das Ionisationsverhalten ist das Modell jedoch ausreichend^{xxiv}. Als molekulares Wechselwirkungspotential mit dem Elektron wird hier ein δ -Potential angesetzt^{xxv},

$$V(\mathbf{r}) = V_0 \left(\delta(\mathbf{r}_1) \frac{\partial}{\partial r_1} r_1 + \delta(\mathbf{r}_2) \frac{\partial}{\partial r_2} r_2 \right), \quad (4.13)$$

wobei \mathbf{r}_1 und \mathbf{r}_2 hier Vektoren sind, die vom jeweiligen Kern auf das Elektron zeigen. Konsequenterweise wird das Wechselwirkungspotential zwischen Ion und Elektron als Kontaktpotential angesetzt. Außerdem wird die in der Molekülphysik übliche Born-Oppenheimer-Näherung verwendet.

Mit diesen Annahmen und Näherungen ergibt sich g_1 analog der Ausführung in [MBBF00] explizit zu

$$g_{1,\pm} = h_{1,\pm}(|\mathbf{R}|) \cdot \begin{cases} \cos\left(\frac{\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}}{2}\right) & \text{für (+): } \sigma_g \text{ (symmetrisch)} \\ \sin\left(\frac{\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}}{2}\right) & \text{für (-): } \sigma_u \text{ (antisymmetrisch)} \end{cases}. \quad (4.14)$$

Die Funktion $h_1(|\mathbf{R}|)$ ergibt sich aus der Energieminimierung beim LCAO-Ansatz. Sie ist wegen des als konstant angenommenen internuklearen Abstandes eine Konstante und somit im Weiteren nicht von Bedeutung. Für die unten auftauchende Funktion $h_2(|\mathbf{R}|)$ gilt dies genauso.

Entsprechend liest sich g_2 dann als

$$g_{2,\pm} = \frac{h_{2,\pm}(|\mathbf{R}|)}{2I_p^+ + (\mathbf{k} - \mathbf{p}_1 - \mathbf{p}_2)^2} \cdot \begin{cases} \cos\left(\frac{(\mathbf{k} - \mathbf{p}_1 - \mathbf{p}_2) \cdot \mathbf{R}}{2}\right) & \text{für (+): } \sigma_g \text{ (sym.)} \\ \sin\left(\frac{(\mathbf{k} - \mathbf{p}_1 - \mathbf{p}_2) \cdot \mathbf{R}}{2}\right) & \text{für (-): } \sigma_u \text{ (antisym.)} \end{cases}. \quad (4.15)$$

Abschließend erfolgt für $|V_{\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \mathbf{k}}|^2 = |g_1(\mathbf{k}) \cdot g_2(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \mathbf{k})|^2$ wieder die Mit-

^{xxii} $\mathcal{E}(t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}(t) - \nabla \phi$. Da hier keine statischen \mathcal{E} -Felder angenommen werden, ist $\nabla \phi = 0$.

^{xxiii} LCAO: **L**inear **C**ombination of **A**tomical **O**rbitalen.

^{xxiv} Sowohl π_g - als auch σ_u -Orbitale sind antisymmetrisch.

^{xxv} Nicht nur ist dies die rechnerisch einfachste Möglichkeit, tatsächlich haben sich Berechnungen mit einem δ -Potential bei der NSDI als sehr erfolgreich erwiesen. Vergleiche hierzu bspw. [GPKB01].

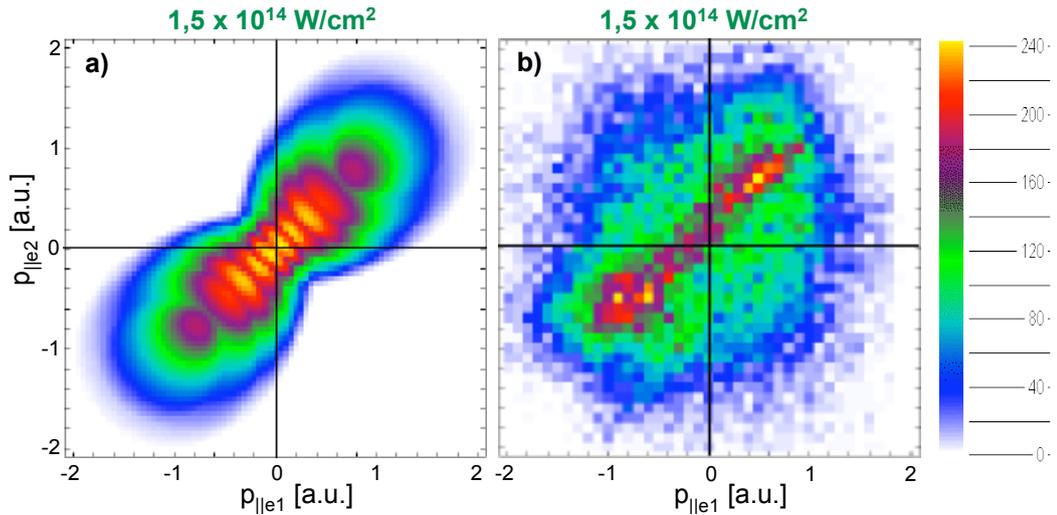


Abb. 4.10.: Berechnete Impulskorrelation der beiden Photoelektronen nach der NSDI von N_2 (a, aus [Ere05]) und zum Vergleich die entsprechende Messung (b) in Falschfarbendarstellung. Die semiklassische Berechnung berücksichtigt die Symmetrieeigenschaften der Molekülorbitale. Die verwendete Lichtintensität liegt bei $\mathcal{E}^2 = 1,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

lung über alle möglichen Orientierungen von \mathbf{R} .

Die hiermit berechneten Elektronenimpulskorrelationen finden sich in Abb. 4.10 und 4.11, die Projektionen hiervon auf den Summenimpuls sind zudem in Abb. 4.9 zu finden. Für N_2 (σ_g -Symmetrie) ergeben sich ähnliche Verteilungen wie die experimentell beobachteten, insbesondere wird auch der signifikante Anteil an Elektronen mit $p_{||}(e_1) = p_{||}(e_2) \approx 0$ gut reproduziert. Die halbe Breite der Verteilung beträgt etwa $4\sqrt{U_p}$. Die Rechnung zeigt zudem, daß die Form der Verteilung primär von $g_{2,+}$, also von der Molekülionengeometrie beim Rückstoßprozeß, abhängt. Eine Variation von $g_{1,+}$ hat in diesem Laserintensitätsbereich nur geringen Einfluß.

Für O_2 (σ_u -Symmetrie) ergibt sich eine völlig andere Verteilung, mit einer klaren Zentrierung um $p_{||}(e_1) = p_{||}(e_2) = 0$. Auch dies ist im Einklang mit den gemessenen Daten. Die halbe Breite der Verteilung liegt bei etwa $2\sqrt{U_p}$, nimmt mit steigender Intensität jedoch langsam ab und nicht zu. Bei hohen Energien verschlechtert sich die Vorhersage des Modells, was aufgrund dessen Simplizität, insbesondere auch der Verwendung eines σ_u - anstelle eines π_g -Orbitals, nicht allzusehr überrascht. Bei sehr kleinen Intensitäten geht die Übereinstimmung sogar qualitativ verloren, was vermutlich an dem kleinen klassisch zugänglichen Phasenraum mit $E_{\text{kin}}(t_r) > I_p^+(t_r)$ (vgl. Abs. 4.1.2.3) liegt. Eine voll quantenmechanische Behandlung mag diese Diskrepanz aufheben. Die Rechnung zeigt zudem, daß die Form der Verteilung primär von $g_{1,-}$ herrührt. Der Sinus-Term unterdrückt den Rückstoß von Elektronen

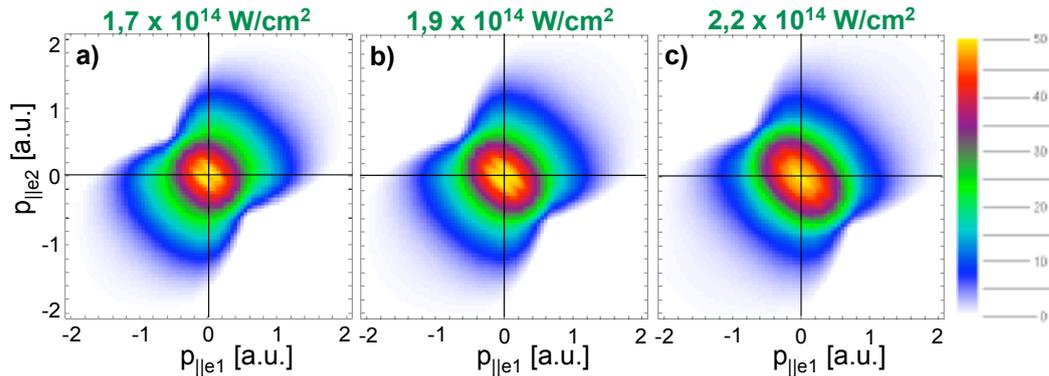


Abb. 4.11.: Berechnete Impulskorrelation der beiden Photoelektronen nach der NSDI von O_2 in Falschfarbendarstellung (aus [Ere05]). Die semiklassische Berechnung berücksichtigt die Symmetrieeigenschaften der Molekülorbitale. Die zugrundeliegenden Lichtintensitäten sind angegeben.

mit kleinem \mathbf{k} , die nahe des Maximums von \mathcal{E} geboren wurden. Dies resultiert in einer Unterdrückung von Sekundärelektronen mit großem p_{\parallel} .

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß auch bei Molekülen die NSDI durch instantane Rückstoßionisation stattfindet. Die gewohnten Signaturen der NSDI in den Elektronenimpulsverteilungen werden jedoch durch die Orbitalstruktur der Moleküle bis zur Unkenntlichkeit verdeckt. Eine semiklassische Berechnung, die diesem Effekt Rechnung trägt, kann jedoch qualitativ gute Vorhersagen liefern. Auffällig ist der starke Einfluß von symmetrischen und antisymmetrischen Molekülorbitalen, wodurch sich erklärt, warum bei manchen Partneratomen ähnliche Verteilungen beobachtet werden und bei anderen nicht.

Wären die Molekülachsen ausgerichtet und nicht statistisch verteilt, sollten noch weit deutlichere Effekte beobachtet werden können. Insbesondere werden für $\mathbf{R} \parallel \mathcal{E}$ und $\mathbf{R} \perp \mathcal{E}$ signifikante Unterschiede erwartet.

4.2. ATI bei Alkaliatomen

Im Gegensatz zur Ionisation von Edelgasen in starken Laserpulsen verläuft der Ionisationsprozeß von Alkaliatomen grundsätzlich anders. Hier sind nur 3 – 4 Photonen zur Ionisation notwendig, der erste angeregte Zustand, die dominante D-Linie, liegt nahezu resonant zur Wellenlänge eines Ti:Saphir-Lasers und kann mit nur einem Photon angeregt werden. Damit spielen Kopplungen zwischen den Zuständen eine erhebliche Rolle. Durch eine geschickte Wahl von verschiedenen Atomspesies besteht sogar die Möglichkeit, die Resonanzfrequenz relativ zur Laserfrequenz »durchzustimmen« und dabei Feinheiten im Verhalten der Mehrphotonenionisation zu untersuchen.

Wegen der Störung durch das äußere Feld erfolgt eine Verschiebung der atomaren Niveaus. Wegen der Quasi-Resonanz mit dem D-Übergang sollte die Rabi-Frequenz Ω_R für eine zusätzliche Aufspaltung der Energieniveaus führen. Da diese Effekte vom momentanen \mathcal{E} -Feld abhängen, sollten intensitätsabhängige Betrachtungen hier einen genaueren Einblick liefern. Zur Zuordnung des Ionisationskanals dienen die winkelaufgelösten Messungen: Die Symmetrieeigenschaften der atomaren Niveaus sollten sich auf die ATI-Maxima übertragen.

Für Cäsium und Lithium liegen winkelaufgelöste Vergleichsmessungen von Nicklich *et al.* vor [NKW⁺92, Nic92], die mit Pulslängen von 70 fs bei einer Zentralwellenlänge von $\lambda = 623$ nm aufgenommen wurden. Da die Zentralwellenlänge mit $\lambda = 800$ nm bei den Messungen hier eine andere ist ($\hbar\omega = 1,55$ eV statt $\hbar\omega = 2$ eV), werden Resonanzeffekte an anderer Stelle bzw. bei anderen Elementen erwartet (vgl. Abb. 4.13). Die kürzeren Pulslängen erlauben es in dieser Arbeit, eine höhere Intensität zu verwenden bevor Sättigung auftritt. Einige grundsätzliche Überlegungen zu den Besonderheiten von Alkaliatomen bei der ATI finden sich bereits in Abs. 2.4.1.2.

Als besondere Motivation für diese Experimente sind angestrebte Folgeexperimente zu sehen: Wegen der Intensitätsabhängigkeit der Beeinflussung der inneratomaren Niveaus, insbesondere wegen des Effekts der *momentanen* \mathcal{E} -Feldstärke, sind starke Einflüsse in Abhängigkeit von der absoluten Phase φ zu erwarten. Zudem stellt sich grundsätzlich die Frage, wie sich diese Atome mit ihren niedrigen Ionisationsschwellen verhalten, wenn sie den extrem hohen Momentanintensitäten von Wenigzyklenpulsen ausgesetzt werden: bilden sie z. B. ein Plateau aus, wie dies bei Edelgasen der Fall ist?

Im Folgenden wird zunächst das für die Messungen verwendete Elektrospektrometer beschrieben und danach werden die eigentliche Messung vorgestellt und analysiert.

4.2.1. Experimenteller Aufbau: ATI-Spektrometer

Das Flugzeitspektrometer ist kompakt genug, um auf einen beweglichen Tisch montiert zu sein. So sind auch Meßkampagnen in Kollaborationen bequem durchzuführen. Der Aufbau ist so modular wie möglich gehalten, um für verschiedene Anwendungen schnell umgebaut werden zu können. Die gesamte Apparatur ist geerdet und mit μ -Metall^{xxvi} gegen äußere Magnetfelder abgeschirmt. Das Ultrahochvakuum ($p < 10^{-6}$ mbar) wird von einer 250 ℓ -Turbomolekularpumpe erzeugt, bei Bedarf kann noch eine Cryopumpe (Helix CTI-Cryogenics *Cryo-Torr*, 800 ℓ) zugeschaltet werden.

Zwei Suprasilfenster von 0,5 mm Dicke dienen zum Ein- und Austritt des Lasers, dessen Fokus in der Mitte der Vakuumkammer liegt. Die Fokussie-

^{xxvi} Als μ -Metall wird ein Metall mit einer hohen magnetischen Suszeptibilität bezeichnet.

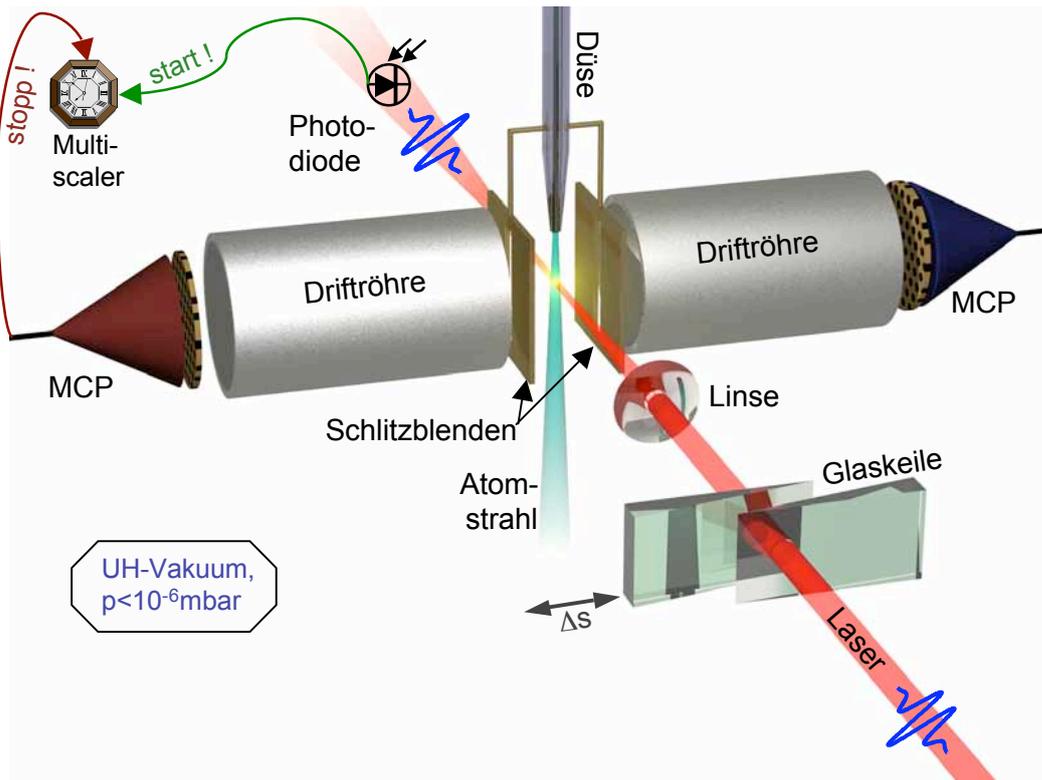


Abb. 4.12.: Skizze des ATI-Elektronenspektrometers in Stereokonfiguration. Die ganze Apparatur ist gegen äußere Felder abgeschirmt und evakuiert. Wenn Alkalimetalle untersucht werden sollen, wird die Gasdüse durch einen Atomofen ersetzt. Die Linse repräsentiert die Fokussierungsoptik und wird bei sehr kurzen Pulsen durch entsprechende Spiegel ersetzt. Die Glaskeile dienen zur Feinkompensation des Chirps und zur Kontrolle der absoluten Phase. Die TOF-Messung selbst ist durch die Uhr oben links symbolisiert: Die Photodiode signalisiert den Beginn der Messung, das eintreffende Elektron auf dem MCP generiert den Stoppuls.

zung erfolgt außerhalb der Kammer, entweder mit einer achromatischen Linse (Bernhard Halle Nachfl. GmbH), oder, bei extrem kurzen Laserpulsen, mit einem konkaven Spiegel. Am Austrittsfenster generiert eine schnelle Photodiode (PD) das Startsignal für die TOF-Messung^{xxvii}.

Als Proben kamen in dieser Arbeit zwei grundverschiedene Substanzen zur Verwendung: Edelgase (vorwiegend Xe und Ar) und Alkalimetalle (Na, K, Rb, Cs). Hierzu muß die Apparatur jeweils umgebaut werden. Edelgase werden mittels einer Glaskapillare ($\varnothing \approx 100 \mu\text{m}$) in die Wechselwirkungszone

^{xxvii}TOF: **T**ime of **F**light.

geblasen, die Einflußmenge läßt sich mittels eines Feinventils regulieren. Die Alkalimetalle werden aus einem Atomofen verdampft, der mit einer kleinen Düse ($\varnothing \approx 400 \mu\text{m}$) abschließt. Über den Heizstrom läßt sich die Temperatur und somit der Gasdruck kontrollieren. Die Heizdrähte des Atomofens sind gegenläufig gewickelt, um das erzeugte Magnetfeld zu minimieren; zusätzlich ist eine μ -Metallabschirmung montiert. Beide Probenquellen sind jeweils an einem 3D-Vakuummanipulator montiert, so daß sie μm -genau positioniert werden können. Mit an der Atomquelle sind zudem dünne, senkrechte Messing-Schlitzblenden montiert. Diese dienen zur Selektion eines kleinen Teils des Laserfokus^{xxviii}: Elektronen, die in anderen als der interessanten Region generiert wurden, werden von der Blende absorbiert.

Symmetrisch zur Wechselwirkungszone liegen zwei gegenüberliegende Flugrohre ($L = 0,5 \text{ m}$), welche mit jeweils einem MCP (*Bi-Polar TOF Detector*, Burle Electro-Optics) abschließen. Wechselwirkungszone und Driftstrecke sind feldfrei, unmittelbar vor den MCPs findet sich jeweils ein geerdetes Gitter. Das MCP wird von einer stabilisierten Hochspannungsquelle (*EHQ 104M*, Iseg Spezialelektronik) versorgt. Das Ausgangssignal wird von einem Verstärker mit integriertem Überlastungsschutz^{xxix} (*HFAC-26*, Becker & Hickl) verstärkt und dient als Stoppsignal für den PC-gestützten Multiscaler (*FAST 7886*, FAST ComTec). Die beiden Arme des Spektrometers sind voneinander komplett unabhängig, entsprechend werden auch jeweils zwei separate Verstärker, Spannungsquellen und Multiscaler verwendet. Diese Stereokonfiguration wird für Messungen benötigt, die von der absoluten Phase (s. Abs. 5.1) abhängen. Für »gewöhnliche« ATI-Messungen genügt es, lediglich einen Arm zu verwenden.

Das Funktionsprinzip des Spektrometers beruht auf der Messung der Flugzeit (TOF). Da die gesamte Apparatur feldfrei ist, ergibt sich die kinetische Energie der Photoelektronen unmittelbar aus deren Flugzeit $t_{\text{TOF}} = t_{\text{stopp}} - t_{\text{start}}$ zu

$$E_{\text{kin}} = \frac{m_e L^2}{2t_{\text{TOF}}^2}. \quad (4.16)$$

Bei der Messung ist lediglich darauf zu achten, daß die relative Verzögerung von Start- und Stoppsignal genau kompensiert wird^{xxx}.

^{xxviii}Hierdurch wird der Untergrund minimiert, dennoch erfolgt wegen des Radialprofils des Lasers *keine* eindeutige Intensitätsselektion. Wichtig sind die Schlitze vor allem bei phasenabhängigen Messungen zur Selektion der Gouy-Phase [LPW⁺04].

^{xxix}Wird das Signal an den MCPs zu groß, sei es durch zuviele Elektronen, eine zu große Verstärkung oder durch ein zu schlechtes Vakuum, können diese leicht beschädigt werden. Übersteigt der Signalstrom $0,1 \mu\text{A}$, so wird die Hochspannung deaktiviert.

^{xxx}Die Kabellängen müssen identisch sein. Zudem muß beachtet werden, daß die Photodiode erst einige 10 cm hinter der Wechselwirkungszone steht. Wird das Photodiodensignal über einen Diskriminator ausgelesen, so ist dessen Verzögerung zu berücksichtigen.

4.2.1.1. Grenzen der Apparatur

Die *Energieauflösung* ΔE der Messung ergibt sich aus der Zeitauflösung Δt . Eine Taylorentwicklung nach Δt liefert mit (4.16) in erster Ordnung

$$\Delta E = 2\sqrt{\frac{2}{m_e} \frac{E^{3/2} \Delta t}{L}}. \quad (4.17)$$

Der Multiscaler hat eine Auflösung von 0,5 ns, durch die leicht schwankende Pulsbreite und -höhe der Ausgangssignale der MCPs ist aber ein Wert von $\Delta t = 1$ ns als realistisch anzusehen. Hiermit ergibt sich $\Delta E(100 \text{ eV}) = 2,3 \text{ eV}$ ($\Delta E/E = 2,3\%$); für kleinere Energien verbessert sich die Energieauflösung sogar auf $\Delta E(1 \text{ eV}) = 2,4 \text{ meV}$ ($\Delta E/E = 0,2\%$). Photoelektronenenergien jenseits von 90 eV treten bei unseren Experimenten nicht auf.

Der *Repetitionsrate* unseres Lasersystems von 100 kHz kann das Spektrometer gut folgen, die Elektronik ist hierzu schnell genug. Die 100 kHz entsprechen einem Puls alle 10 μs , somit könnten rein rechnerisch noch extrem langsame Elektronen von 7 meV gemessen werden. Tatsächlich werden jedoch bei weniger als 400 meV keine sinnvollen Ereignisse mehr gemessen – trotz aller Abschirmung und Erdung sind schwache Streufelder und Kontaktpotentiale nicht völlig zu vermeiden.

Die maximale *Anzahl der Elektronen* pro Schuß, die registriert werden kann, wird in diesem Aufbau vor allem durch die Totzeit der Elektronendetektion bestimmt: Jedes Elektron erzeugt einen Signalpuls, der eine Breite von etwa 2 ns hat; trifft in dieser Zeit ein weiteres Elektron auf den Detektor, so wird es ignoriert. Dieser Effekt fällt besonders bei hochenergetischen Elektronen ins Gewicht: Messungen hierzu zeigten, daß im Energiefenster zwischen 20 eV und 50 eV im Mittel nicht mehr als 10 Elektronen gezählt werden können. Absatz 5.3.2 beschreibt einen modifizierten Spektrometernaufbau, der dieser Limitierung gezielt entgegenarbeitet. Für aussagekräftige Messungen ist auf jeden Fall darauf zu achten, daß der Gasdruck so niedrig gewählt wird, daß man unterhalb dieses kritischen Bereichs arbeitet.

4.2.1.2. Variation der Laserparameter in einer Messung

Bei allen systematischen Messungen wird die Intensität, die Polarisationsachse, die Elliptizität der oder die absolute Phase der Laserpulse variiert. Dazu steuert der Meßcomputer einen Schrittmotor an, der eine Optik im Strahlengang des Lasers modifiziert: Verschieben des in Abb. 4.12 gezeigten Glaskeils ändert die absolute Phase, Verdrehen eines $\lambda/2$ -Plättchens dreht die Polarisation des Strahls. Setzt man hinter das $\lambda/2$ -Plättchen noch ein $\lambda/4$ -Plättchen, so variiert stattdessen die Elliptizität, mit einem Wollaston-Prisma an dessen Stelle variiert die Intensität. Soweit möglich, wird der gesamte Variationsbereich mehrfach durchgeföhren, um Intensitätsdriften des Lasers herauszumitteln. Durch

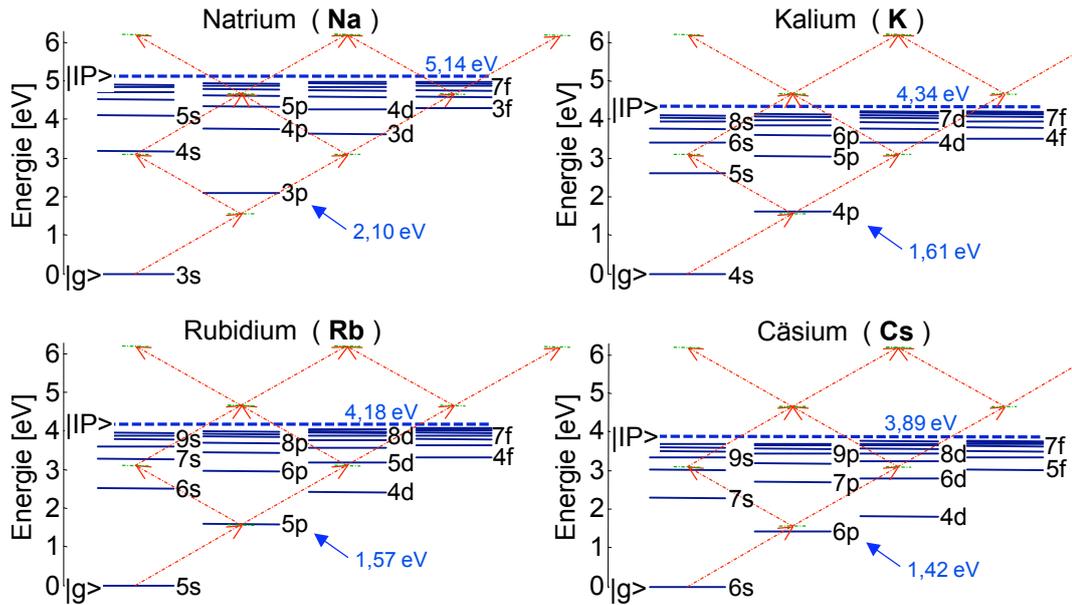


Abb. 4.13.: Atomare Niveaus der untersuchten Alkaliatome ohne Beachtung der jeweiligen Feinaufspaltungen (Daten aus [Ste03, RS85]). Die diagonal verlaufenden Pfeile entsprechen jeweils einem Laser-Photon mit $1,55 \text{ eV}$ ($\lambda = 800 \text{ nm}$). Man sieht, daß nur beim Rb die D-Linie (fast) resonant getroffen wird. Nicht eingezeichnet ist hier die Niveaushiftung und -aufspaltung durch das äußere Feld.

die vollständige Automatisierung kann hier sehr effizient gearbeitet werden.

4.2.2. Wechselswirkung von Alkaliatomen mit 40 fs-Pulsen

Mit dem hochrepetitiven Laser aus Abs. 3.1 und dem oben beschriebenen Elektronen-Spektrometer, welches mit einem Ofen zum Verdampfen der Alkali-metalle ausgestattet wurde, wurden zahlreiche, winkelaufgelöste ATI-Spektren in Abhängigkeit der Intensität aufgenommen. Zusätzlich wurde der Einfluß der Elliptizität der Polarisation auf die Spektren untersucht. Die Fokussierung des Lasers erfolgte, je nach Intensitätsbereich, mit einem $f = 80 \text{ mm}$ oder einer $f = 150 \text{ mm}$ -Achromat. Die f -Zahl liegt somit bei $f_{\#} = 10$ oder $f_{\#} = 25$. Es zeigt sich allerdings, daß die scharfe Fokussierung bessere Ergebnisse liefert: bei gleicher Intensität erscheinen die ATI-Maxima energetisch weniger ausgewaschen. Die Laserpulse sind bei $\lambda = 800 \text{ nm}$ zentriert und haben eine Länge von $\Delta t = 40 \text{ fs}$. Da Intensitäten jenseits der 10^{14} W/cm^2 unweigerlich zur Sättigung führen, sind wenige μJ Pulsenergie hier völlig ausreichend. Eine einfache Abschätzung auf Basis der ADK-Theorie zeigt, daß mit den verwendeten Pulslängen maximal Intensitäten von 10^{13} W/cm^2 auf die Ato-

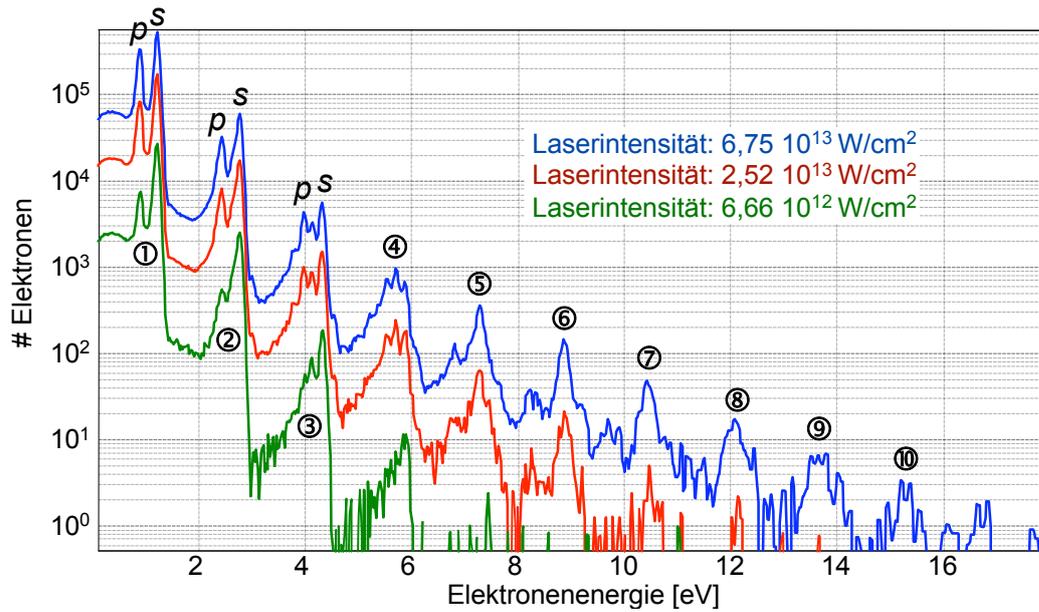


Abb. 4.14.: ATI-Spektren von Cs. Die ATI-Ordnung der Peaks ist durchnummeriert. Die Spektren wurden unter identischen Bedingungen bei den Intensitäten von $6,75 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $2,52 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ und $6,66 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ aufgenommen. Die Verikalverschiebung dient nicht nur der besseren visuellen Unterscheidbarkeit, sondern ergibt sich ohne jede Manipulation aus der intensitätsabhängigen Elektronenzählrate.

me wirken können, bevor diese ionisieren (vgl. Abb. 2.3 und den Kommentar in Abs. 2.4.1.2). Tatsächlich dürfte dieser Wert etwas niedriger ausfallen, da die Voraussetzungen für Tunnelionisation hier streng genommen nicht gegeben sind und zudem quasi-resonante Zustände vorliegen. Die im Folgenden genannten Laserintensitäten beziehen sich immer auf die Spitzenintensitäten, die rechnerisch im Fokus zu erwarten sind. Welche Intensitäten bis zur Ionisation tatsächlich auf die Atome wirken, ist daraus nicht unmittelbar zu entnehmen.

Trotz der genannten Einschränkungen ist klar, daß mit den uns zur Verfügung stehenden Pulsen ein interessanter Parameterbereich experimentell zugänglich ist. Die Energieniveauschemata der untersuchten Elemente, zusammen mit den möglichen Laseranregungen, sind zur Referenz in Abb. 4.13 zusammengefaßt.

4.2.2.1. Interpretation der Struktur eines ATI-Spektrums am Beispiel von Cs

Am Beispiel von Cäsium soll hier gezeigt werden, wie die oft komplizierten Strukturen der ATI-Spektren auf verschiedene Ionisationskanäle zurückgeführt werden können. In Abb. 4.14 sind ATI-Spektren von Cäsium gezeigt, die unter

ansonsten identischen Bedingungen bei verschiedenen Laserintensitäten aufgenommen wurden. Man kann bis zu 12 ATI-Maxima erkennen, was zeigt, daß durch die kurzen Pulse tatsächlich sehr hohe Intensitäten auf die Atome wirken können. Die Abstände der Maxima ⑤ – ⑧ entsprechen genau der Photonenenergie. Nahezu alle anderen Maxima weisen eine deutliche Unterstruktur auf, die ersten 3 Maxima bestehen aus jeweils zwei separate Peaks (mit p und s gekennzeichnet).

Ein Blick auf das Niveauschema von Cs in Abb. 4.13 verrät, daß die Photoelektronen rein rechnerisch mindestens auf eine Überschußenergie von 0,77 eV zurückgreifen können. Leider ist die absolute Eichung des ATI-Spektrometers nicht sehr genau, so daß nicht zwingend davon ausgegangen werden kann, hier sogleich fündig zu werden. Zudem verändert sich die Position der atomaren Niveaus durch das äußere Feld. Gehen wir für den Moment davon aus, der rechte Teilpeak (s) vom Maximum ① entspräche dem ersten ATI-Maximum. Ein weiterer Blick in Abb. 4.13 zeigt, daß der erste angeregte Zustand von Cäsium ($6p$) geringfügig gegen den Laser rotverstimmt ist. Der Übergang ist der Resonanz aber nahe genug, daß davon auszugehen ist, daß der $6p$ -Zustand im äußeren Feld eine nicht zu vernachlässigende Besetzung aufbaut. Somit besteht die Möglichkeit, ein Elektron von dort durch einen 2-Photonenübergang ins Kontinuum zu überführen. Ein so erzeugtes Elektron hat eine um die Verstimmung niedrigere Energie als eines, welches direkt vom $6s$ -Grundzustand ionisiert wurde. Auf diese Weise kann der linke Teilpeak (p) vom Maximum ① erklärt werden: die Separation der beiden Peaks entspricht (ungefähr) der Verstimmung von Laser und atomarer Resonanz. Die gleiche Argumentation greift natürlich auch für die folgenden ATI-Peaks, da jedes Elektron bei der Wechselwirkung mit Atom und Feld noch weitere Photonen absorbieren kann. Dabei bleibt die Energieaufspaltung unverändert, was man in den Spektren auch beobachtet. Vergleicht man die 3 Kurven aus Abb. 4.14, so sieht man, daß die Besetzung des p -Zustandes, und somit die Stärke des entsprechenden Peaks, mit steigender Feldintensität zunimmt. Auch dies entspricht den Erwartungen.

Um diese Argumentation weiter zu stützen, wurden die ATI-Spektren zusätzlich winkelaufgelöst aufgenommen. Die entsprechende Messung ist in Abb. 4.15 gezeigt. Die Laserintensität entspricht etwa der energetischsten Cs-Kurve aus Abb. 4.14. Aus den Kurven der Winkelabhängigkeit sieht man, daß sich die beiden Teilpeaks eines jeden ATI-Maximums voneinander unterscheiden: Während die rechten s -Peaks ihre Position stabil beibehalten, scheint es so, als ob die p -Peaks für unterschiedliche Raumrichtungen unterschiedliche Energien aufweisen. Ein möglicher Grund hierfür könnte in der Feinstrukturaufspaltung des $6p$ -Niveaus liegen. Die markierten Peaks werden in der nebenstehenden Abbildungen noch genauer auf ihr Symmetrieverhalten untersucht. Hierzu wird die integrierte Anzahl der Elektronen im Peak als Funktion der Raumrichtung aufgetragen. Aus physikalischen Gründen muß

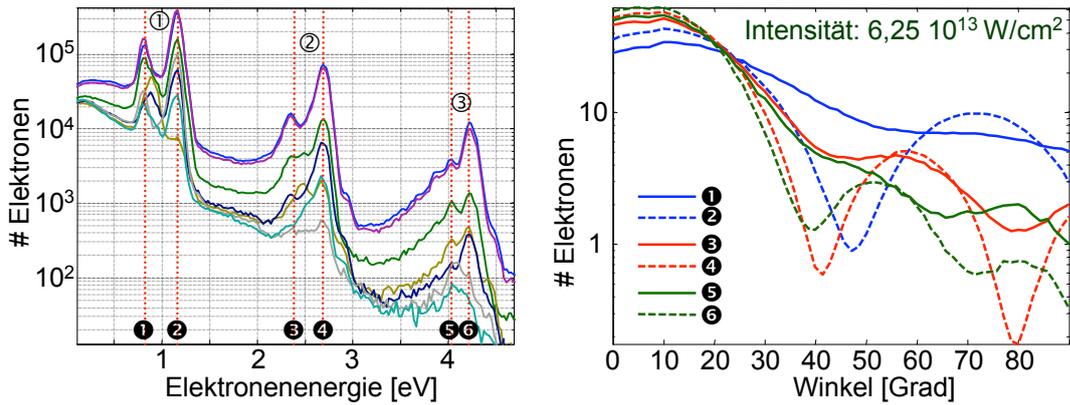


Abb. 4.15.: *Links*: Winkelau aufgelöste ATI-Spektren von Cs bei einer Laserintensität von $6,25 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$. Von oben nach unten sind die Spektren unter 0° , 15° , 30° , 45° , 60° , 75° und 90° gezeigt. Die senkrechten Linien markieren die Peaks, die in der Abbildung rechts analysiert werden. *Rechts*: Symmetrieverhalten der links markierten Peaks ① – ⑥. Gezeigt ist die Stärke der Peaks, also die Elektronenausbeute, in Abhängigkeit vom Winkel ϑ relativ zur Laserpolarisation. Der Nullpunkt der Winkelmessung muß um etwa 8° korrigiert werden: die Kurven sollten symmetrisch zur 90° -Marke verlaufen. Die halblogarithmische Darstellung dient lediglich dazu, die für große ϑ abnehmende Elektronenzählrate visuell auszugleichen.

Achsensymmetrie um $\vartheta = 90^\circ$ vorliegen. Daß dies hier nicht der Fall ist, liegt lediglich in einer ungenauen Nullpunktsbestimmung begründet, die sonst aber keine weitere Relevanz hat. Den Kurven entnimmt man, daß alle *s*-Peaks einen sehr ausgeprägten Kontrast aufweisen, wohingegen die Winkelabhängigkeit der *p*-Peaks eher bescheiden ausfällt. Zählt man die Anzahl der Knoten (extrapoliert auf den Bereich $\vartheta = 0^\circ \dots 180^\circ$), so ergeben sich für beide Teilpeaks aus dem Maximum ① 3, für diejenigen aus dem nächsten Maximum jeweils 4 und für die aus ③ jeweils 5 Knoten, wobei dies für die *p*-Peaks wegen des schwachen Kontrastes diffizil zu erkennen ist. Die sich hieraus ergebende Symmetrieeigenschaften sollte mit der Orbitalsymmetrie der zugrundeliegenden Zustände übereinstimmen. Nach Abb. 4.13 ist für das erste ATI-Maximum (für den *s*- und den *p*-Teilpeak) ein *p*- oder *f*-Zustand zu erwarten, wobei ein *p*-Zustand wahrscheinlicher ist. Auf den ersten Blick ist man geneigt, die Symmetrie des Maximums ① als die eines *f*-Orbitals zu interpretieren, jedoch sollte man mit dieser Aussage sehr vorsichtig sein. Die tatsächliche Zuordnung der Winkelverteilungen wird durch die Beobachtung von Mischzuständen sehr erschwert. Wie die Symmetrien der höheren Maxima zu interpretieren sind, ist im Moment noch ungeklärt.

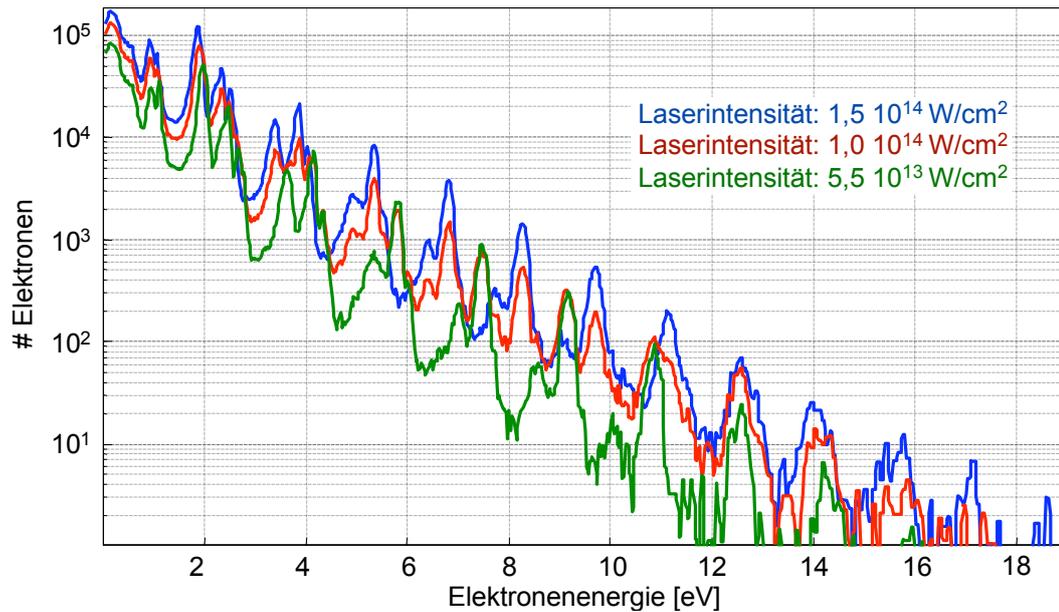


Abb. 4.16.: ATI-Spektren von K. Die Spektren wurden unter identischen Bedingungen bei den Intensitäten von $1,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $1,0 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und $5,5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ aufgenommen.

4.2.2.2. Weitere Beobachtungen

Wie zuvor erläutert, konnte ein Teil der Substruktur der ATI-Maxima bei Cs der Besetzung des ersten angeregten Zustandes zugeordnet werden. Ab dem 3. Maximum erscheint ein dritter Teilpeak und die Struktur der Maxima höherer Ordnung wird zusehens komplizierter. Zur Zeit fehlen jedoch noch quantenmechanische Rechnungen, um dies genauer zuzuordnen.

Die Spektren von Rubidium weisen ähnlich strukturierte Peaks auf, wie die von Cäsium. Allerdings konnten lediglich ATI-Maxima bis zur 5. Ordnung generiert werden. Wegen des exakt resonant liegenden $5p$ -Niveaus (vgl. Abb. 4.13) scheint die Sättigungsintensität hier wesentlich niedriger zu liegen als bei den anderen untersuchten Elementen.

Eine Blauverschiebung, wie sie in [NKW⁺92] beobachtet wurde, konnte in Cs hier nicht reproduziert werden. Ein solcher Effekt wurde jedoch in aller Deutlichkeit bei Kalium beobachtet (Abb. 4.16). Allerdings handelt es sich hier nicht um die intensitätsabhängige Verschiebung des Spektrums, wie man sie aufgrund einer Modifikation des atomaren Grundzustands vom äußeren Feld erwarten würde. Tatsächlich erfolgt die Verschiebung der Spektren nur eng um den Intensitätsbereich von $1,0 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, wohingegen eine Veränderung jenseits des hier dargestellten Bereiches zu keiner weiteren Beeinflussung führt! Eine zweite Resonanzposition dieser Art, an der ebenfalls eine Blauverschiebung gleicher Stärke passiert, wurde

bei $1,3 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ gefunden. Eine genaue Untersuchung mit einer feinen Auflösung der Intensitätsschritte zwischen zwei Messungen zeigt, daß sich die Spektren tatsächlich nicht *verschoben*, wie zunächst angenommen. Beim Durchfahren der Laserintensität bilden sich an neuer Position schwache Peaks aus, die dann plötzlich anwachsen, während sich die zuvor vorhandenen Peaks gleichzeitig zurückbilden. Die absolute Position der einzelnen Peaks bleibt währenddessen unverändert. In Rubidium wurde das gleiche Verhalten bei den Intensitäten $1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und $9,8 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ beobachtet. Die Natur dieses Phänomens ist zum jetzigen Zeitpunkt noch Gegenstand weiterer Untersuchungen.

Abschließend kann man sagen, daß es mit ultrakurzen Pulsen möglich ist, auch bei Alkali-Atomen hohe Ordnungen der ATI-Spektren zu beobachten. Die Spektren weisen eine faszinierende Struktur auf und halten einige Überraschungen bereit. Während sich einige Eigenschaften durch eine einfache Analyse der atomaren Niveaustuktur verstehen lassen, entziehen sich andere Phänomene einem solch unmittelbaren Zugang. An dieser Stelle wird es nötig, aufwendige quantenmechanische Berechnungen zu erhalten, um das Wesen der zugrundeliegenden Prozesse zu erkennen.

5. Wenigzyklenpulse und die absolute Phase

Mit der Erzeugung von Pulsen einer Länge von nur wenigen Zyklen des elektromagnetischen Feldes gewinnt eine neue physikalisch Größe an Relevanz: die Phase zwischen der Einhüllenden des Pulses und der Trägerwelle (als absolute oder CEO-Phase bezeichnet). Dieses Kapitel erläutert die relevanten Begriffe und beschreibt die grundsätzlichen Methoden zur Erzeugung solch kurzer Pulse und zur Stabilisierung der absoluten Phase. Ein entsprechendes Lasersystem wird vorgestellt und eine neue, nicht-optische Methode zur Bestimmung und zur Stabilisation der absoluten Phase wird präsentiert.

EUTZUTAGE IST es möglich, Laserpulse von 5 fs bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm zu erzeugen. Man sollte sich in diesem Fall visualisieren, wie das \mathcal{E} -Feld eines solchen Pulses tatsächlich aussieht (Abb 5.1). Die Periodendauer der Trägerfrequenz beträgt 2,6 fs, d. h. der Puls besteht folglich nur noch aus 3 optischen Zyklen^{1}! Bei allen »gewöhnlichen« Messungen ist unmittelbar nur die Intensität des elektrischen Feldes sichtbar, tatsächlich physikalisch relevant ist aber das \mathcal{E} -Feld selbst. Bei solch extrem kurzen Wenigzyklenpulsen werden Asymmetrien des \mathcal{E} -Felds nicht mehr weggemittelt und kategorisch neue Effekte können beobachtet werden. So ist beispielsweise eine der größten Herausforderungen bei der Erzeugung isolierter as-Pulse, die Bereitstellungen von Laserpulsen mit identischem und definiertem \mathcal{E} -Feld [CMK97, KGU⁺04].

Dieses Kapitel beschreibt die zentralen »neuen« Eigenschaften der angesprochenen Pulse, ebenso wie ihre Erzeugung und die dazu notwendige Diagnostik. In Kapitel 6 ab Seite 95 werden einige Messungen vorgestellt, die mit den hier vorgestellten Methoden und dem damit zusammenhängenden Lasersystem ermöglicht wurden.

^{1}Die 5 fs gelten für die Intensität, also $\text{FWHM}(\mathcal{E}^2) = 5 \text{ fs} \iff \text{FWHM}(\mathcal{E}) = \sqrt{2} \cdot 5 \text{ fs} \approx 7 \text{ fs}$.

5.1. Die absolute oder CEO-Phase

Ein *Oligozyklen-* oder *Wenigzyklenpuls*^{ii} definiert sich typischerweise als ein weniger als 10 fs kurzer Puls. Diese Zahl gilt jedoch nur für eine Zentralwellenlänge von $\lambda = 800$ nm, denn die Bezeichnung ist im Gegensatz zu *Femtosekundenpuls*^{iii} (< 100 fs) oder *Attosekundenpuls* (≤ 1 fs) keine Längenangabe per se, sondern bezeichnet den Umstand, daß die Amplitude des elektrischen Feldes sich auf einer vergleichbaren Zeitskala verändert, wie die Trägerwelle selbst. Anders formuliert: Die *Einhüllende* des Pulses enthält nur wenige Zyklen der elektromagnetischen Schwingung.

Visualisiert man sich einen solchen Puls, ergibt sich Abb. 5.1. Man erkennt sofort, daß das physikalisch relevante \mathcal{E} -Feld für Pulse gleicher Länge grundverschieden sein kann. Die Größe, die diese verschiedenen Möglichkeiten klassifiziert, ist die *absolute Phase*, häufig auch als *CEO-Phase*^{iv} bezeichnet. Die Begriffe sind synonym und definieren sich, wie auch der Abbildung zu entnehmen, als die relative Phase vom Maximum der Trägerwelle zum Maximum der Einhüllenden:^{v}

$$\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_0 h(t) \cos(\omega t + \varphi) , \quad (5.1)$$

mit der auf den Maximalwert 1 normalisierten, reellwertigen^{vi} und periodischen Einhüllenden $h(t)$. Erwähnung finden sollten noch die Bezeichnungen des *sinusartigen* Pulses bei einer absoluten Phase von $\varphi = \frac{3}{2}\pi$ und des *kosinusartigen* Pulses bei $\varphi = 0$.

In jedem »gewöhnlichen« Laseroszillator kommt es zu kleinen Fluktuationen der resonatorinternen Dispersion, sei es durch Schwankungen der Pumpintensität, der Resonatorlänge, der Temperatur, durch Luftbewegungen oder anderes. In einer Verstärkerkette wird dieser Effekt noch verstärkt. Aufgrund der hohen Empfindlichkeit der absoluten Phase gegenüber solchen Schwankungen^{vii}, werden ohne besondere Maßnahmen lediglich Pulsfolgen mit Pulsen weitgehend zufälliger absoluter Phase erzeugt. Im folgenden Abschnitt wird eine höchst elegante, vollständig optische Methode zur *Stabilisation* der absolu-

^{ii} Nach griech. *ὀλιγος*, »oligos« = wenige. Zur Verdeutlichung des Unterschiedes zu längeren Pulsen können diese dann auch als *Polyzyklenpulse* bezeichnet werden.

^{iii} Statt von *Femtosekundenpulsen* ist häufig einfach nur von *ultrakurzen Pulsen* die Rede.

^{iv} CEO: Carrier-Envelope Offset

^{v} Diese Definition ist die übliche, aber leider nicht die einzige. Manche Theoretiker definieren den Nullpunkt der absoluten Phase nicht über die Maxima, sondern, sofern die Einhüllende über echte Nullstellen verfügt, über den »Anfang« des Pulses. Beim Studium der Literatur sollte man dies überprüfen, genau wie die üblichen Vorzeichenfehler.

^{vi} Die Gleichung gilt nur für ungechirpte Pulse. Will man den Chirp berücksichtigen, so kann man (5.1) durch $\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_0 h(t) \exp[-i(\omega t + \varphi)] + \text{k. k.}$ ersetzen, wobei hier $h(t)$ komplexwertig ist.

^{vii} Eine Änderung der Dispersion verändert auch das Verhältnis $v_{\text{Gruppe}}/v_{\text{Phase}}$, was sich direkt auf φ auswirkt.

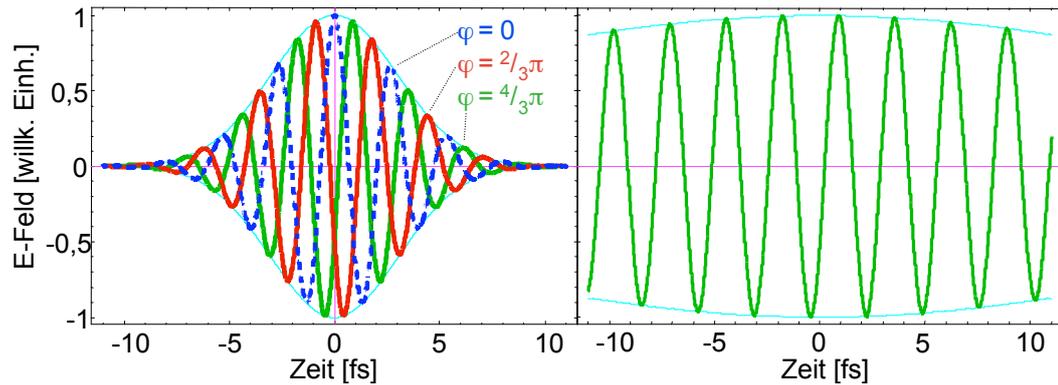


Abb. 5.1.: \mathcal{E} -Feld eines Wenigzyklenpulses (die Zahlenwerte gelten für 800 nm-Pulse mit $\text{FWHM}(\mathcal{E}^2) = 5$ fs) für verschiedene Werte der absoluten Phase φ . Zum Vergleich ist *rechts* im gleichen Maßstab ein Puls von 35 fs gezeigt. Man erkennt, daß die absolute Phase dort keine Rolle spielt.

ten Phase vorgestellt. Tatsächlich bestimmt werden kann φ mit dieser Methode allerdings nicht, für diesen Zweck wird die Apparatur aus Abs. 5.3 benötigt.

5.1.1. Phasenstabilisierung mit der f - $2f$ -Methode

Wie schon angedeutet, gibt es im Laseroszillator keine Effekte, die die absolute Phase automatisch stabilisieren. Unmittelbar aufeinanderfolgende Pulse haben eine leidlich stabile Phasendrift $\Delta\varphi$ zueinander, aber bereits nach wenigen Pulsen ist keine Korrelation mehr zu beobachten. Eine Möglichkeit, $\Delta\varphi$ direkt zu messen, besteht in der Autokorrelation zweier aufeinanderfolgender Pulse [XSP⁺96]. Wesentlich einfacher und eleganter kann dies jedoch mit der sogenannte f - $2f$ -Methode erreicht werden. Diese wurde erstmals von T. W. HÄNSCH und J. L. HALL als Basis für den optischen *Frequenzkamm* realisiert [JDR⁺00, HUH⁺00], für den 2005 der Nobelpreis für Physik verliehen wurde. Sozusagen als Nebeneffekt einer bekannten Position des Frequenzkammes ergibt sich gemäß (5.3) ein bekannter Schlupf $\Delta\varphi$ der absoluten Phase von Puls zu Puls [TSD⁺99, RHUH99].

Ist $\Delta\varphi$ bekannt, so kann man durch geeignete Rückkopplungsmechanismen die Dispersion im Oszillator so korrigieren, daß $\Delta\varphi$ über lange Zeit konstant auf einem gewünschten Wert bleibt. Ist z. B. $\Delta\varphi = \pi/2 = 2\pi/4$, so weist jeder vierte Puls ein identisches \mathcal{E} -Feld auf. An Möglichkeiten zur Korrektur der oszillatorinternen Dispersion gibt es im Wesentlichen zwei: Einmal kann ein Endspiegel mit einem Piezomotor geringfügig verkippt werden, wodurch sich der Strahlengang und die Länge des durchlaufenen Materials ändert [RHUH99]. Die andere Möglichkeit besteht in der Steuerung der Pumpleistung mittels ei-

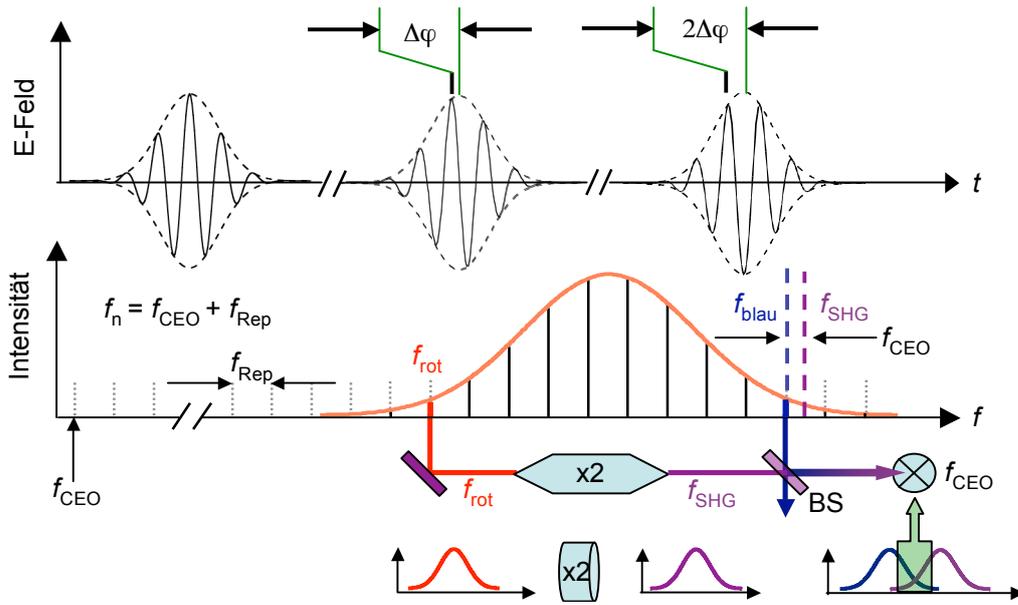


Abb. 5.2.: Skizze der Moden des Frequenzkammes im Spektrum eines ultrakurzen Pulses und zur Rolle von f_{CEO} . Im *oberen* Teil ist das gleiche Bild im Zeitraum zu sehen. Es gilt der Zusammenhang $\Delta\varphi = 2\pi f_{\text{CEO}}/f_{\text{Rep}}$. Der *unterste* Teil der Skizze zeigt die Meßmethode von f_{CEO} . Für die gemessene Schwebungsfrequenz gilt: $f_{\text{SHG}} - f_{\text{blau}} = 2(f_n + f_{\text{CEO}}) - (2f_n + f_{\text{CEO}}) = f_{\text{CEO}}$, mit $f_{\text{rot}} \equiv f_n$.

nes AOMs, was wegen des intensitätsabhängigen Brechungsindex $n = n(\mathcal{E}^2)$ im Lasermaterial ebenfalls zu einer Änderung der Dispersion führt [PHA⁺01].

Was steckt also hinter dem Frequenzkamm? Wie in Abb. 5.2 skizziert, ist das Spektrum eines Pulses kein Kontinuum, sondern besteht aus praktisch unbegrenzt scharfen Einzelmoden, deren Abstand durch die Repetitionsrate des Lasers f_{Rep} gegeben ist. Dies ergibt sich sofort aus der Fouriertransformation der periodischen Einhüllenden $h(t) = h(t+T_{\text{Rep}})$ des Pulszuges. Da zwei aufeinanderfolgende Pulse für gewöhnlich aber nicht identisch sind, kann die Fouriertransformierte nicht für den gesamten Ausdruck (5.1) gebildet werden: Ist $0 \leq \Delta\varphi \leq 2\pi$ die Phasendrift zweier aufeinanderfolgender Pulse, dann verschiebt sich der Frequenzkamm um $f_{\text{CEO}} = (\Delta\varphi/2\pi)T_{\text{Rep}}^{-1} = (\Delta\varphi/2\pi)f_{\text{Rep}}$ [RHUH99]. Das heißt, jede Frequenz f_n im Laserpuls kann ausgedrückt werden durch

$$f_n = f_{\text{CEO}} + n f_{\text{Rep}}, \quad (5.2)$$

mit $n \in \mathbb{N}$. Diese Beziehung ist von zentraler Bedeutung in der Hochpräzisionsspektroskopie. Für uns ist hier nur

$$\Delta\varphi = 2\pi \frac{f_{\text{CEO}}}{f_{\text{Rep}}} \quad (5.3)$$

von Interesse. Die Repetitionsfrequenz f_{Rep} des Lasers ist trivial zu messen und ergibt sich gemäß $f_{\text{Rep}} = T_{\text{Rep}}^{-1} = v_{\text{Gruppe}}/2L$ aus der Resonatorlänge L .

Wie kann aber f_{CEO} bestimmt werden? Voraussetzung der hier gezeigten Methode ist, daß das Spektrum des Pulses breit genug ist und mindestens eine volle Oktave überspannt. Ist dies intrinsisch nicht der Fall, so kann das Spektrum mittels einer Mikrostrukturfaser [KA74, KBRA96] verbreitert werden – die Modenstruktur bleibt hierbei erhalten. Abbildung 5.2 zeigt im unteren Teil das Meßprinzip: Eine Frequenz f_n aus dem niederfrequenten Teil des Spektrums wird verdoppelt und mit einer Frequenz f_{2n} verglichen. Für $f_{\text{CEO}} \neq 0$ ist $2f_n \neq f_{2n}$, bzw. mit (5.2)

$$f_{\text{CEO}} = 2f_n - f_{2n}. \quad (5.4)$$

Experimentell beobachtet man an einer Photodiode f_{CEO} als Schwebungssignal der beiden Frequenzen. Wegen $f_{\text{CEO}} < f_{\text{Rep}} \lesssim 100$ MHz ist dies mit gängiger RF-Elektronik leicht möglich. Steht genügend Energie zur Verfügung, so besteht auch die Möglichkeit, statt lediglich der Schwebungsfrequenz gleich das ganze Interferenzspektrum mit einem Spektrometer aufzunehmen. Gemäß [KTK⁺01] ergibt sich das beobachtete Interferenzmuster proportional zu $I_0(\omega) + I_{\text{SHG}}(\omega) - 2[I_0(\omega) \cdot I_{\text{SHG}}(\omega)] \sin(\omega\tau + \varphi)$, woraus man φ numerisch bestimmen kann. τ ist hier die Verzögerung zwischen dem Puls der Fundamentalwellenlänge (I_0) und dem frequenzverdoppelten Puls (I_{SHG}). Wegen der Kohärenz des Spektrums ist es bei keiner der beiden Methoden notwendig, den verwendeten Spektralbereich auf einzelne »Zinken« des Frequenzkammes einzuschränken.

5.2. Das phasenstabilisierte 1 kHz-Lasersystem LWS 0,1

Nachdem im letzten Abschnitt das Prinzip der Phasenstabilisierung erklärt wurde, wird hier ein Lasersystem vorgestellt, welches diese anwendet. Tatsächlich war der *LWS 0,1*^{viii} das erste Lasersystem, das *verstärkte*, phasenstabilisierte Wenigzyklenpulse erzeugen konnte [BUU⁺03, BUG⁺03]. Alle Messungen zu Effekten der absoluten Phase (Kapitel 6) wurden in Kollaboration mit der Forschungsgruppe von F. KRAUSZ an diesem Laser durchgeführt.

Bei dem Laser handelt es sich um ein System auf Ti:Saphir-Basis, mit Oszillator, Multipass-Verstärker und Hohlfaserkompressor. Bei dem Oszillator handelt es sich um ein kommerzielles Gerät (*Femtsource Compact Pro*,

^{viii}LWS: Light Wave Synthesizer. Die 0,1 steht für die Leistungsklasse von 0,1 TW.

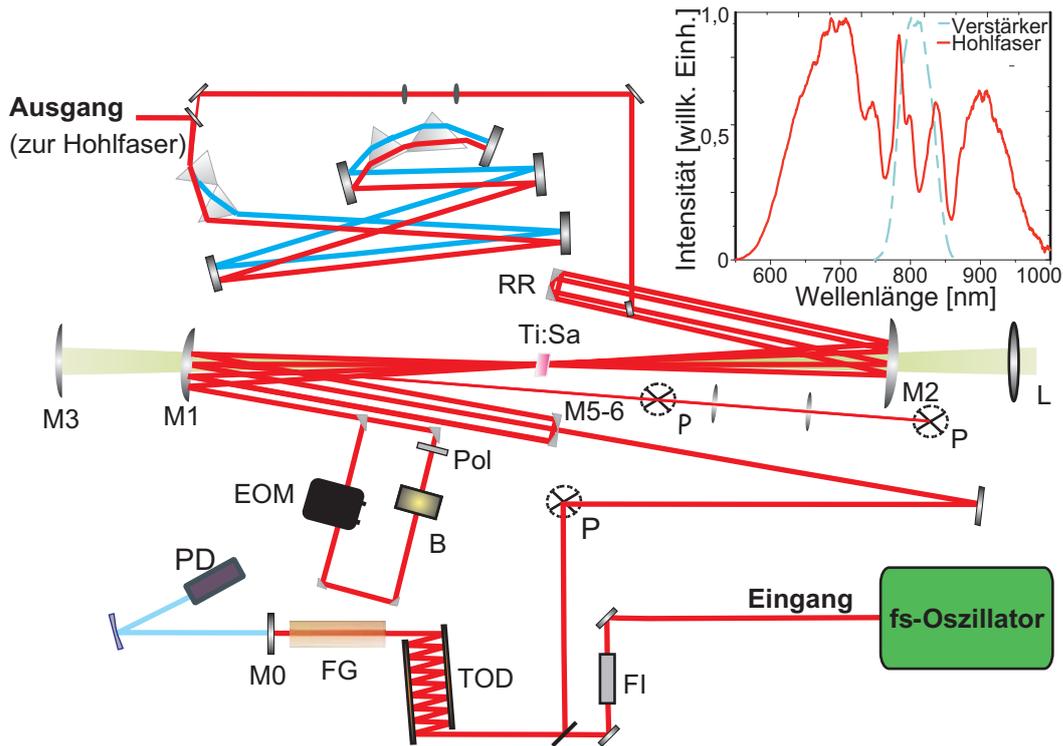


Abb. 5.3.: Übersichtsskizze (nach [Gou05]) vom Verstärker des LWS 0,1 (nicht maßstabsgetreu). *Oben rechts* ist das Spektrum der Pulse vor und nach der Hohlfaserverbreiterung zu sehen. Die Abkürzungen bedeuten *FI*: Faraday-Isolator, *TOD*: geschirpte Spiegel (dritter Ordnung), *FG*: 5 cm SF57 Flintglas, *M0*, *M1*, *M2*: Dichroische Spiegel, *PD*: Photodiode, *P*: Periskop, *Ti:Sa*: Verstärkerkristall, *RR*: Retroreflektor, *EOM*: Pockelszelle, *B*: Berek Polarisator, *Pol*: Polarisator, *L*: Linse, *M3*: fokussierender Spiegel für den Pumplaser.

Femtolasers GmbH^{ix}). Der Multipassverstärker ist mittlerweile unter der Bezeichnung *Femtopower Compact Pro* ebenfalls kommerziell erhältlich, eine ausführliche Beschreibung hiervon findet sich in [SCL⁺97], eine Skizze in Abb. 5.3. Als Pumpquellen kommen ein Coherent *Verdi-V5* (5 W Dauerstrich, vgl. auch [WZHE04]) für den Oszillator und ein Coherent *Corona* (10 W, gepulst bei 1 kHz) für den Verstärker zum Einsatz, beides diodengepumpte und frequenzverdoppelte Festkörperlaser (Nd:YVO₄ bzw. Nd:YAG).

Der Oszillator generiert Pulse von 10 fs und 5 nJ bei einer Repetitionsrate von 80 MHz. Diese Pulse werden durch einen Faraday-Isolator in den Verstärker eingekoppelt und mit einem Durchlauf durch insgesamt 10 cm Flintglas auf einige 10 ps gestreckt. Mittels einer Pockelszelle wird ein einzelner Puls

^{ix}Die Femtolasers Produktions GmbH ist eine Spin-Off-Firma der KRAUSZ-Gruppe.

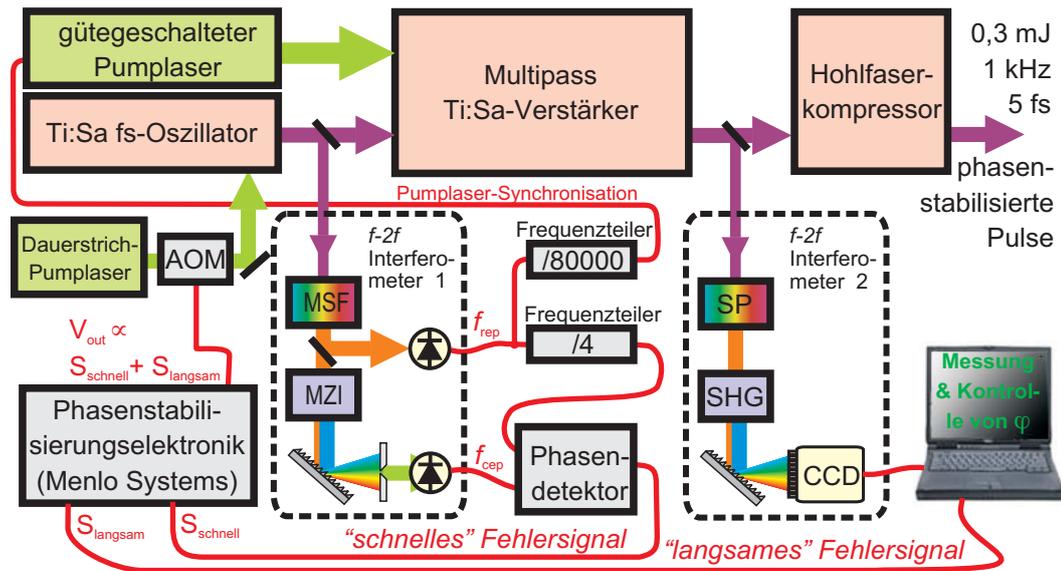


Abb. 5.4.: Funktionsprinzip der zweistufigen Phasenstabilisierung des LWS 0,1 (nach [BUU+03]). Die Abkürzungen bedeuten *AOM*: akustooptischer Modulator, *MSF*: Mikrostrukturfaser, *MZI*: Mach-Zehnder Interferometer, *SP*: Saphirplättchen, *SHG*: Frequenzverdopplerkristall. Die Steuerspannung V_{out} des AOM ist proportional zur Summe der beiden Fehlersignale.

ausgewählt. Die eigentliche Verstärkung findet in einem zur Minimierung von thermischen Linseneffekten auf -30°C gekühlten Ti:Saphir-Kristall statt, der von dem zu verstärkenden Puls in einer Schmetterlingsanordnung durchlaufen wird. Nach 4 der insgesamt 9 Durchläufe wird das Strahlprofil des Pulses mit einer Streulinse korrigiert. Zudem minimiert ein Spektralfilter mit einem bei 800 nm zentrierten gaußschen Absorptionsprofil die spektrale Einengung bei der Verstärkung^{x}. Komprimiert wird der Puls mit einem Doppelpriemenkompressor, sowie einigen gechrpten Spiegeln zur Feinkontrolle. Insgesamt ergeben sich so Pulse von 25 fs und 850 μJ . Diese werden nun, ähnlich wie in Abs. 3.2.2.2 beschrieben, in einer mit 2 bar Neon befüllten Hohlfaser von 260 μm Innendurchmesser spektral verbreitert. Komprimiert werden die Pulse von 4 gechrpten Spiegelpaaren, so daß schlußendlich Pulse von unter 5 fs und 300 μJ zur Verfügung stehen.

Wirklich herausragend wird das Lasersystem dadurch, daß die absolute Phase der erzeugten Wenigzyklenpulse kontrolliert und stabilisiert werden kann. Abbildung 5.4 zeigt, wie die in Abs. 5.1.1 vorgestellte Methode zur Anwendung kommt. Der Oszillator wird mittels der durch einen AOM variierten Pumplleistung stabilisiert. Das schnelle Rückkopplungssignal wird

^{x}Der Effekt ist besser bekannt unter dem englischsprachigen Begriff *gain narrowing*.

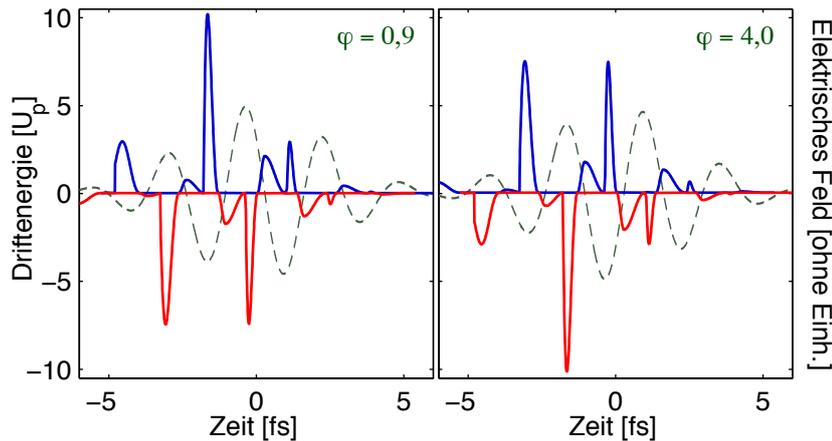


Abb. 5.5.: Klassisch erwartete Driftenergie von ATI-Photoelektronen in Abhängigkeit ihrer Startzeit t_0 . Das Vorzeichen der Driftenergie zeigt die Richtung der Emission (L oder R) an. Das elektrische Feld ist gestrichelt eingezeichnet und entspricht einer Pulslänge von 4 fs.

hier aus dem Schwebungssignal eines $f - 2f$ -Interferometers bestimmt. Genau jeder 80.000-te Puls wird in den Verstärker eingekoppelt und verstärkt. Durch die Wahl von $\Delta\varphi_{\text{Oszillator}} = \pi/2$ wird so erreicht, daß alle Eingangspulse an dieser Stelle die gleiche absolute Phase φ aufweisen. Um Phasendrifts während der Verstärkung auszugleichen, wird nach dem Verstärker $\Delta\varphi$ erneut gemessen und das entsprechende (langsame) Rückkopplungssignal für $\Delta\varphi_{\text{Verstärker}} = 0$ dem (schnellen) Oszillatorkopplungssignal überlagert. Wegen der geringen Repetitionsrate erfolgt die Messung von $\Delta\varphi_{\text{Verstärker}}$ nicht über die Schwebungsfrequenz, sondern über eine Analyse des entsprechenden Spektrums. Nur so ist es auch möglich, auf einem Wert von $\Delta\varphi = 0$ zu stabilisieren. Die notwendige Steuerelektronik wurde von der Menlo-Systems GmbH^{xi} entwickelt und bereitgestellt.

Somit besteht nun erstmals die Möglichkeit, intensive, phasenstabilisierte Wenigzyklenpulse zu erzeugen. Die Phasenstabilisierung basiert hier ausschließlich auf optischen Methoden. Der große Nachteil dabei ist, daß zwar eindeutig $\Delta\varphi = 0$ gilt, jedoch der tatsächliche Wert von φ unbekannt bleibt. Dies ist besonders bei langandauernden Messungen ein Problem, da es unmöglich ist, den Laser nach einem Zusammenbruch der Stabilisierung wieder auf den alten Wert von φ zurückzustellen. Zudem zeigt sich, daß die Langzeitstabilität dieses Stabilisierungsschemas nicht perfekt ist (s. Abb. 5.7). Um diese Schwierigkeit zu überwinden, ist ein vollständig anderer Ansatz von Nöten, welcher im Rest dieses Kapitels dargelegt wird.

^{xi}Menlo-Systems ist eine Spin-Off-Firma der HÄNSCH-Gruppe.

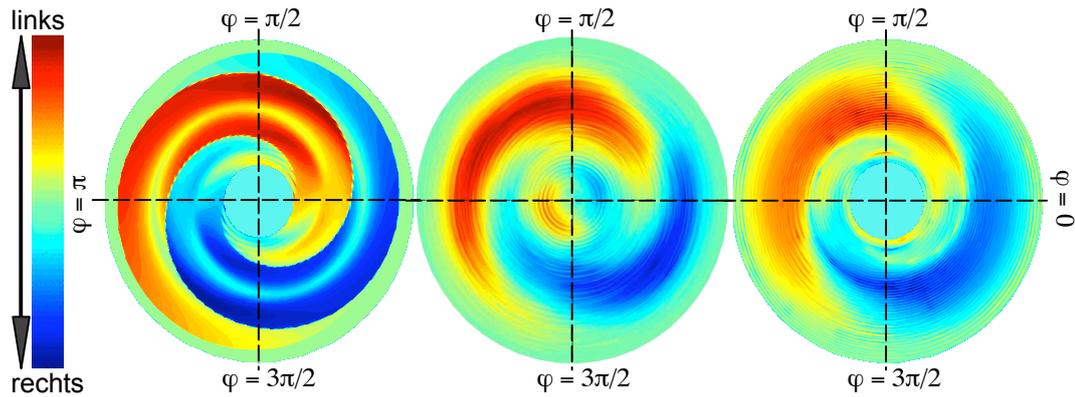


Abb. 5.6.: Polardiagramme der Phaseeffekte in den ATI-Spektren. Die Farbkodierung beschreibt das Verhältnis des Signals der beiden Meßrichtungen (L/R). Rot entspricht Emission nach links, blau nach rechts; die Farbkodierung erfolgt logarithmisch. Die Winkelkoordinate beschreibt die absolute Phase, die Radialkoordinate die Elektronenenergie (linear von innen nach außen: $0 \dots 60$ eV). Das Panel in der *Mitte* ist eine Messung mit dem Stereo-ATI-Experiment, *links* eine semiklassische Berechnung, *rechts* eine quantenmechanische Berechnung in der Starkfeldnäherung (nach [MPB03]). Die Berechnungen berücksichtigen nur rückgestreute Elektronen, daher ist der niederenergetische Bereich ausgespart.

5.3. Stereo-ATI-Phasenmeter

Die Grundidee bei der Messung der absoluten Phase besteht darin, Asymmetrien des \mathcal{E} -Feldes durch Asymmetrien in dadurch hervorgerufenen physikalischen Effekten sichtbar zu machen. Dies ist erstmals 2001 gelungen, seinerzeit noch mit Pulsen zufälliger absoluter Phase [PGW⁺01]. Dank der Weiterentwicklung der Lasertechnik kann die gleiche Methode heute wesentlich kontrollierter und zielgerichteter eingesetzt werden, so daß die absolute Phase tatsächlich eindeutig bestimmt werden kann. Asymmetrien des \mathcal{E} -Feldes beeinflussen physikalische Prozesse umso stärker, je größer die Intensitätsabhängigkeit hierbei ist. Natürliche Kandidaten sind dementsprechend HHG (Abs. 2.4.3, [BUU⁺03]) und ATI (Abs. 2.4.1, [PLW⁺03]). Grundsätzlich ist auch NSDI hierzu geeignet, jedoch sind die experimentellen Anforderungen ungleich höher (vgl. Abs. 6.1). Der Nachteil der HHG besteht darin, daß es prinzipbedingte Uneindeutigkeiten bei der Bestimmung von φ gibt: Hohe Harmonische werden durch die Rekombination des rückkehrenden Elektrons mit dem Mutterion erzeugt; hierbei ist es irrelevant, aus welcher Richtung das Elektron zurück kommt – die Symmetrie wird nicht vollständig gebrochen, Laserpulse mit $\varphi = \varphi_0$ und $\varphi = \varphi_0 + \pi$ rufen das gleiche Harmonischenspektrum hervor. Diese Uneindeutigkeit tritt

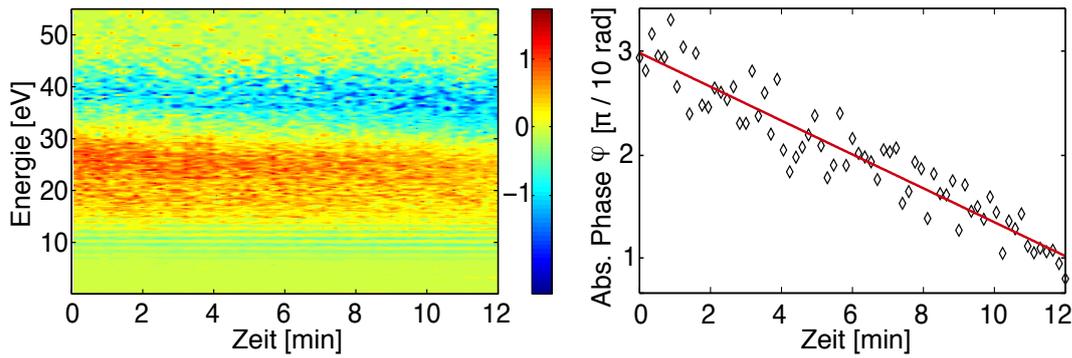


Abb. 5.7.: Phasenverlauf des stabilisierten Lasersystems. *Links* ist die Asymmetrie des gesamten ATI-Spektrums in der gleichen Falschfarbencodierung wie in Abb. 5.6 gezeigt. *Rechts* der hieraus extrahierte Wert der absoluten Phase φ . Jeder Datenpunkt entspricht dem integrierten Elektronensignal im Energiefenster 20...40 eV über 10^4 Schuß. Pro Datenpunkt werden damit etwa 4300 Elektronen berücksichtigt, die Streuung erklärt sich durch die Poisson-Statistik. Man erkennt deutlich eine langsame Drift, obwohl die Korrektur durch die beiden optischen Regelkreisläufe aktiv ist.

bei der ATI *nicht* auf [MPB03]. In Abb. 5.5 ist dies durch Darstellung des klassisch berechneten Driftimpulses der ATI-Elektronen veranschaulicht.

Der experimentelle Aufbau des *Stereo-ATI-Phasenmeters* deckt sich weitgehend mit der Beschreibung des ATI-Spektrometers aus Abs. 4.2.1^{xii}. Als Wechselwirkungsmedium kommt hier wegen der hohen Nichtlinearität ein Edelgas zur Verwendung, typischerweise Xenon. Ganz wesentlich ist die *Stereo-Konfiguration*. Hierdurch können Photoelektronen in Richtung von $+\mathcal{E}$ und von $-\mathcal{E}$ gleichzeitig beobachtet werden. Durch den Vergleich der Signale auf der linken (L) und rechten (R) Seite, kann man so die beobachtete Asymmetrie um Effekte bereinigen, die auf beiden Seiten identisch stattfinden, bspw. infolge von Intensitätsfluktuationen. Die in Abb. 4.12 gezeigten Glaskeile ($2,8^\circ$) haben hier die Aufgabe, den Wert der absoluten Phase kontrolliert zu variieren. Eine Veränderung der durchlaufenen Glasdicke von $52\ \mu\text{m}$ ändert die absolute Phase um 2π , ohne dabei merklich die Pulsdauer zu beeinflussen. Abbildung 5.6 zeigt so erhaltenen Meßdaten. Der $\Delta\varphi = 2\pi$ -Bereich wurde alleine durch Verschieben der Glaskeile erreicht, während der Laser durchgängig stabile Pulse lieferte.

Aus Vergleich von theoretischer Vorhersage und Messung kann der Wert der absoluten Phase innerhalb eines Fehlers von etwa $\pi/10$ zweifelsfrei

^{xii}Tatsächlich wurden alle in dieser Arbeit beschriebenen ATI- und Phasenmessungen (mit der einzigen Ausnahme von Abs. 5.3.2) immer mit derselben Apparatur durchgeführt. Ggf. wurde diese für spezielle Aufgaben geringfügig modifiziert.

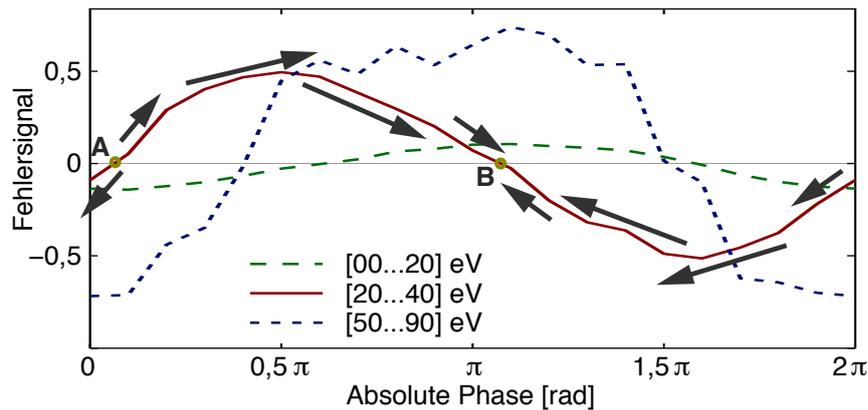


Abb. 5.8.: Gemessenes Fehlersignal als Funktion der absoluten Phase φ . Die Kurven sind aus den Rohdaten der Messung aus Abb. 5.6 berechnet gemäß $(L - R)/(L + R)$. Die drei Kurven entsprechen verschiedenen Energiebereichen der Photoelektronen. Man erkennt deutlich die stärkere Phasenabhängigkeit von hochenergetischen Elektronen, leider aber auch die geringere Qualität des Signals (Rauschen) aufgrund geringerer Zählraten. Die grauen Pfeile verdeutlichen das Prinzip der aktiven Phasenstabilisierung: Eine zum Fehlersignal proportionale Menge an Glas wird in den Strahlengang eingefügt (bzw. entfernt, wenn das Fehlersignal negativ ist). Wegen der Sinusform des Fehlersignals ergeben sich somit zwei Gleichgewichtslagen (A und B), von denen aber nur eine stabil ist (B).

bestimmt werden. Bereits ein einzelner »Meßpunkt« (zwei ATI-Spektren) reicht hierzu aus. Ein Scan über 2π ermöglicht die bequeme Zuweisung auf einen Blick, ist aber nicht notwendig.

Mittels des hier beschriebenen Phasenmeters existiert eine vollständig unabhängige Methode zur Überprüfung der Phasenstabilität des Lasersystems. Langzeitmessungen zeigen zumeist eine langsame aber stetige Drift der Phase in der Größenordnung einiger 10 mrad/min, wie in Abb. 5.7 gezeigt. Ob diese Form der Instabilität ein prinzipielles oder nur ein technisches Problem darstellt (vgl. §5 in [DAL⁺04]), wurde bisher noch nicht abschließend geklärt. Unabhängig der Ursache kann unser Phasenmeter zur Korrektur aller langsamen Instabilitäten eingesetzt werden, wie im nächsten Abschnitt beschrieben.

5.3.1. Langzeitstabilisierung der absoluten Phase

Soll das in Abs. 5.2 beschriebene Lasersystem für langwierige Messungen eingesetzt werden, so gibt es mit der Phasenstabilisierung zwei Probleme. Einmal die bereits angesprochene langsame Drift, die – rein rechnerisch – im Verlauf

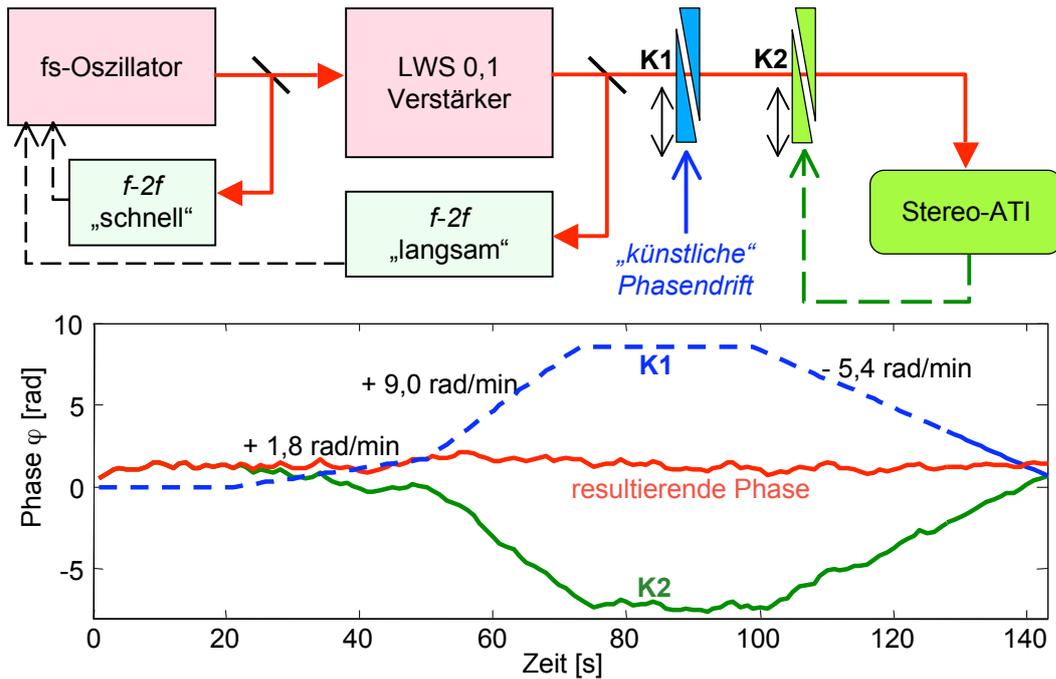


Abb. 5.9.: Eine Störung der CEO-Phase φ wurde durch ein extern kontrolliertes Paar von Glaskeilen (K1) induziert. Wie *oben* skizziert, mißt das sATI-Phasenmeter diese Störung und steuert ihr mit einem automatisch kontrollierten Paar von Glaskeilen (K2) selbstständig und in Echtzeit entgegen. *Unter* dem Versuchsaufbau sind die Störung (blau gestrichelte Linie), die Korrektur (grüne Linie) und die resultierende Phase φ (rot) abgebildet.

einiger Stunden eine vollständige Mittelung über die Phase bewirkt. Zum anderen ist eine andauernde Messung jenseits von 30 Minuten nicht realistisch. Spätestens dann muß der Laser nachjustiert und die Phase erneut fixiert werden. Leider gibt es keine Möglichkeit, den Wert der absoluten Phase φ wieder auf den gleichen Wert wie zuvor einzustellen.

Eine Kombination des Stereo-ATI-Phasenmeters mit dem phasenstabilisierten Lasersystem kann diese Probleme leicht lösen [SLP⁺04]. Abbildung 6.1 (S. 96) zeigt den hierzu modifizierten experimentellen Aufbau. Über einen Strahlteiler werden etwa $15 \mu\text{J}$ der Pulsenergie in das sATI-Phasenmeter geleitet. Dieses mißt die Phase und kontrolliert damit ein Paar Glaskeile, die im gemeinsamen Strahlweg stehen. Praktisch genügt es, wenn das Phasenmeter die Phase nicht tatsächlich mißt, sondern lediglich das Verhältnis der Elektronenanzahl auf dem linken und rechten Detektor innerhalb eines gewissen Energiefensters stabil (identisch) hält. Abbildung 5.8 verdeutlicht dies. Hinter den kontrollierten Glaskeilen ist der Wert von φ garantiert, egal welche Form von (langsamer) Störung die absolute Phase im oder nach dem Lasersystem

beeinflusst. Zum Test der Methode wurden bekannte Variationen von φ erzeugt, die automatisch »korrigiert« werden konnten, wie in Abb. 5.9 zu sehen ist.

Mit dieser einfachen Methode kann eine Stabilität der absoluten Phase nun vollständig garantiert werden. Zudem kann nach einem »Neustart« des Lasers nun auch reproduzierbar derselbe Wert von φ bereitgestellt werden. Wegen der relativ geringen Laserpulsenergie, die das sATI-Phasenmeter benötigt, funktioniert diese Anwendung gut in Kombination mit anderen Experimenten. Die in Abs. 6.1 beschriebene Messung ist ein schönes Beispiel hierfür.

Gedanklich kann man sich diese Form der Langzeitphasenstabilisierung als eine dritte Stufe im Phasenstabilisierungsschema aus Abb. 5.4 denken. Ziel ist es natürlich, die zweite optische Rückkopplungsstufe vollständig durch das Phasenmeter zu ersetzen. Mit dem hier verwendeten Aufbau ist dies wegen der in Abs. 4.2.1.1 angesprochenen Limitierung der pro Schuß detektierbaren Elektronenanzahl noch nicht möglich. Es sind lediglich Bandbreiten im Bereich von 0,1 Hz erreichbar, für die zweite Stabilisierungsstufe des Lasers werden hingegen nahezu 100 Hz benötigt. Eine technische Weiterentwicklung in diese Richtung wird im nächsten Absatz besprochen.

5.3.2. Auf dem Weg zum Einzelschuß-Phasenmeter

Das zuvor beschriebene sATI-Phasenmeter erfüllt seine Aufgabe der Bestimmung der absoluten Phase φ ausgezeichnet, ist jedoch sehr langsam. Für eine gute Statistik und einen genauen Wert von φ werden viele Elektronen benötigt, deren Messung ca. 10^4 Laserschüsse benötigt. Um unmittelbar als Ersatz für den »langsamen« Regelkreis der Laserphasenstabilisierung eingesetzt werden zu können, muß dies innerhalb von einigen 10 Schuß möglich sein. Eine weitere Anwendung für das Phasenmeter wäre innerhalb eines Hochenergielasersystems. Wegen der dort zu erwartenden starken Fluktuationen muß hier der Wert von φ bereits mit 1 Schuß eindeutig bestimmbar sein. Solche Einzelschußmessungen wurden bereits in HHG-Messungen demonstriert [NSS⁺03], jedoch sind diese wegen der hierzu benötigten hohen Pulsenergie und der intrinsischen Unbestimmtheit des Vorzeichens von φ als Diagnosewerkzeug kaum geeignet.

5.3.2.1. Grundsätzliche Überlegungen

Welche Möglichkeiten bestehen zur Optimierung der Elektronenausbeute? Naiv betrachtet gibt es hierzu drei Ansätze:

1. Erhöhung der Ionisationseffizienz,
2. Vergrößerung der Anzahl der Atome im Fokus,
3. Verbesserung der Elektronendetektion.

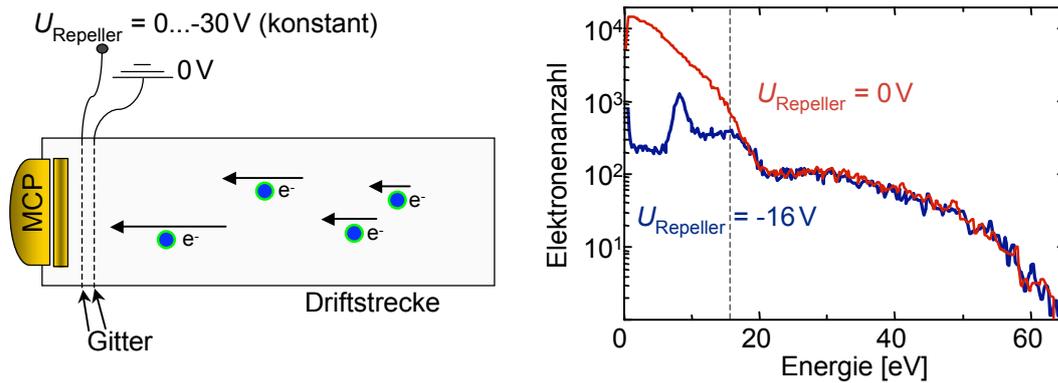


Abb. 5.10.: Aufbau des elektrostatischen Repellers. Das erste Gitter (in Flugrichtung) ist geerdet, um eine feldfreie Driftstrecke zu garantieren. Das zweite Gitter wird auf ein konstantes Potential $U_{\text{Repeller}} = -5 \dots -30 \text{ V}$ gelegt. Elektronen mit kinetischen Energien diesseits der $5 \dots 30 \text{ eV}$ können diese Potentialbarriere nicht passieren. Umgekehrt erfahren Elektronen mit $E_{\text{kin}} \geq e U_{\text{Repeller}}$ nahezu keine Verzögerung, da die Gitter sehr dicht beieinander und zudem nur knapp vor dem Detektor angebracht sind (Abstand jew. etwa $0,5 \text{ mm}$). Eine Spannung von $U_{\text{Repeller}} = 0 \text{ V}$ produziert nahezu das gleiche Elektronenspektrum, wie der komplette Ausbau der Konstruktion. Rechts ist ein ATI-Spektrum mit und ohne Spannung am Repeller dargestellt. Die relevanten Teile des Spektrums bleiben praktisch unverändert. Tatsächlich wird U_{Repeller} meist soweit erhöht, daß möglichst alle Elektronen vor dem Plateau unterdrückt werden und die Zählrate entsprechend erhöht werden kann.

Punkt 1 ließe sich über einer Erhöhung der Intensität erreichen. Nachteile sind hier die Erzeugung sehr schneller Elektronen, deren energieaufgelöste Detektion anspruchsvoller wird. Zudem verstärkt sich der Effekt der Intensitätsmittelung, wie durch Betrachten des Extremfalles klar wird: Erzeugt die Intensität im Zentralbereich des Fokus eine Sättigung der Ionisation, so nimmt die Elektronenanzahl aus Regionen kleinerer Intensität im Vergleich kaum ab. Das Problem ist, daß »hochenergetische« Elektronen, die in einem Bereich niedriger Intensität geboren werden, nicht von »niederenergetischen« Elektronen, die in einem Bereich hoher Intensität geboren werden, unterschieden werden können. Obwohl beide Elektronen die gleiche Energie aufweisen, ist ihr Verhalten in Bezug auf φ jedoch ein anderes. Die zu erwartende Erhöhung der Ausbeute ist zudem nicht allzu groß: Bei Intensitäten von knapp 10^{14} W/cm^2 liegt die Ionisationswahrscheinlichkeit von Xe bei nahezu 30%. Eine weitere Erhöhung würde insbesondere Probleme durch Raumladungen heraufbeschwören. Ein weiterer Nachteil wäre das Verschwinden des

Plateaus [GPW⁺03], welches eine sehr hilfreiche Orientierungshilfe zur Grobbestimmung der Lichtintensität darstellt.

Punkt 2 kann durch eine Vergrößerung des Volumens (größerer Fokus unter Beibehaltung der Spitzenintensität) oder eine Erhöhung der Partikeldichte (höherer Gasdruck p) erreicht werden. Wird der Fokus vergrößert, so muß die Pulsenergie quadratisch mit dem Fokusdurchmesser d ansteigen, um die Intensität unverändert zu lassen. Die Anzahl der Elektronen N_e wächst linear mit der Anzahl der Atome im Fokus. Diese hängt linear vom Druck p ab, zudem linear vom Fokusvolumen^{xiii} V . Relevant ist aber nicht das tatsächliche Fokusvolumen, sondern das durch die Schlitzblenden zur Selektion der Gouy-Phase projizierte Volumen. Die Breite dieser Schlitzblenden skaliert bei Beibehaltung der Phasenauflösung mit der Rayleigh-Länge z_R , so daß gilt: $V_{\text{eff}} \propto \pi d^2 z_R = \pi^2 d^4 / \lambda$. Im tatsächlichen Aufbau sind die Laserwellenlänge λ und der Strahldurchmesser D des unfokussierten Laserstrahles konstant, somit skaliert wegen $d = 2\lambda f / D$ das Volumen $V \propto f^4$, mit der Brennweite der Fokussierungsoptik f . Folglich gilt insgesamt $N_e \propto p f^4$, vorausgesetzt die Pulsenergie wird mit $E \propto f^2$ erhöht und die Schlitzblenden werden an die neue Geometrie angepaßt^{xiv}. Zum Vergleich: Bleibt die Geometrie der Schlitzblenden unverändert (und kleiner d) und wird nur der Strahldurchmesser d durch weichere Fokussierung vergrößert, so skaliert $N_e \propto \sqrt{E}$. Dies gilt wieder unter der Annahme, daß die Intensität pro Fläche durch entsprechende Erhöhung der Pulsenergie E konstant gehalten wird.

Punkt 3 bietet ebenfalls mehrere Lösungsmöglichkeiten. Einmal könnten die Elektronen durch eine komplexe Ionenoptik verlangsamt werden, was einen ähnlichen Effekt hätte, wie längere Flugrohre. Wegen der größeren Flugdauer nimmt die Anzahl der Elektronen pro Zeiteinheit am Detektor ab. Da dieser Ansatz relativ aufwendig ist, wurde er über einen einzelnen Prototypen hinaus nicht weiter verfolgt. Gerade unter dem Aspekt der Verwendung des Phasenmeters als reines Diagnosewerkzeug sollte es eher das Ziel sein, eine einfache und kompakte Apparatur zu konstruieren. Da die Information über jedes einzelne Elektron nicht von Interesse ist, braucht nicht jeder einzelne Signalimpuls als solchen diskriminieren und gezählt zu werden. Stattdessen besteht die Möglichkeit, den an den MCPs erzeugten Strom als eine Funktion der Zeit zu messen. Hierdurch ist die Zahl der detektierbaren Elektronen praktisch unbegrenzt, mit der einzigen Einschränkung, daß der Gesamtstrom nicht über der Zerstörschwelle der MCPs liegen darf. Die Elektronenanzahl als Funktion der Energie ist eine nahezu exponentiell abnehmende Funktion, d. h. der Löwenanteil der gemessenen Elektronen hat eine sehr geringe Energie, gleichzeitig weisen diese Elektronen nur eine schwache Phasensensitivität auf (vgl. Abb. 5.8). Mittels einer simplen Konstruktion aus zwei Gittern

^{xiii} Als Fokusvolumen sei hier das von einer bestimmten Isointensitätsfläche eingeschlossene Volumen verstanden.

^{xiv} In der Praxis ist das für die Elektronendetektion benötigte Ultrahochvakuum zu beachten!

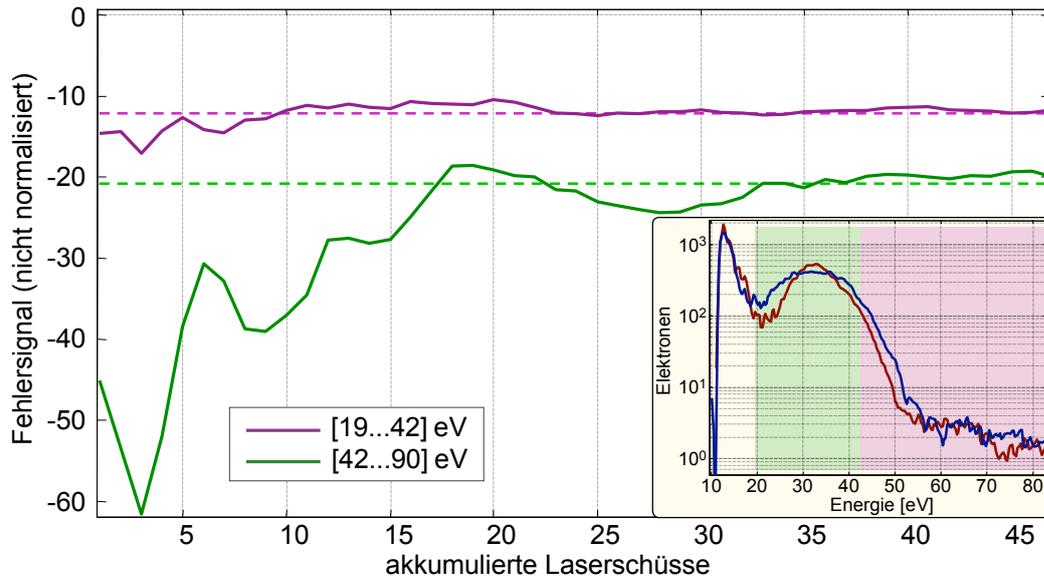


Abb. 5.11.: Konvergenzverhalten des Fehlersignals $(L-R)/(L+R)$ bei der Mittelung über mehrer Schüsse. Die beiden Kurven entsprechen den beiden höherenergetischen Energiefenstern aus Abb. 5.8, also Plateau und Cut-Off, die gestrichelten Kurven geben den Mittelwert an. Das gesamte ATI-Spektrum (integriert über 200 Schuß) ist in der Unterabbildung zu sehen, die angesprochenen Energiebereiche sind noch einmal optisch hervorgehoben. Niederenergetische Elektronen werden durch den Repeller unterdrückt ($U_{\text{Repeller}} = 14 \text{ V}$).

vor dem Detektor kann man niederenergetische Elektronen nahezu vollständig unterdrücken. Das Prinzip dieses sogenannten *Repellers*^{xv} ist in Abb. 5.10 gezeigt. Als Letztes kann versucht werden, einen größeren Winkelbereich der Elektronenverteilung zu erfassen. Hierzu können entweder die MCPs größer oder die Driftstrecken kürzer werden. Letzteres senkt zwar gemäß (4.17) die Energieauflösung, führt aber auch zu einem kompakteren Aufbau. Der Effekt der Erhöhung von N_e ist jedoch begrenzt, da das Gros der hochenergetischen Elektronen parallel zur Laserpolarisation emittiert wird [PGW⁺00].

5.3.2.2. Umsetzung

Die zuvor beschriebenen Überlegungen wurden in eine neue, kompakte Apparatur integriert (Abb. 5.12). Sie basiert auf einem ISO-K 100 Würfel und wird mittels einer 60 ℓ/s -Turbomolekularpumpe *TMH 071 P* von Pfeiffer Vacuum evakuiert. Die Driftstrecken wurden auf jeweils $L = 20 \text{ cm}$ verkürzt und durch eingefügte μ -Metallrohre gegen Magnetfelder abgeschirmt. Um einen hohen Gasdruck p zu erzeugen, ohne das für die Elektronendetektion notwendige

^{xv}Repeller, von engl. *to repel*, abstoßen.

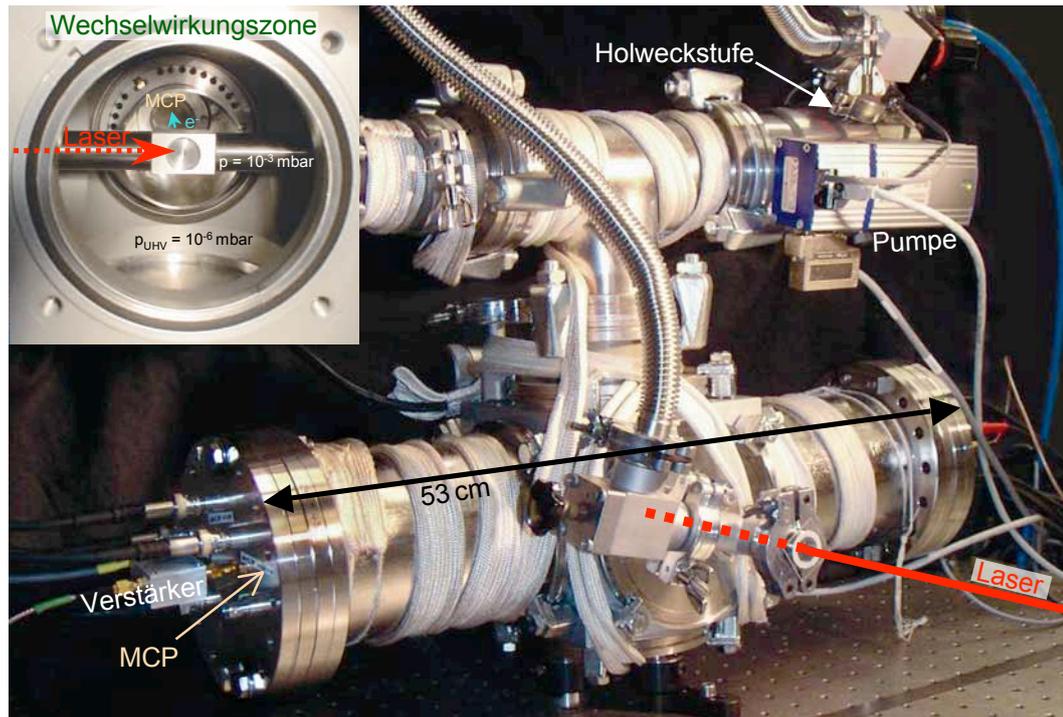


Abb. 5.12.: Photo des kompakten sATI-Phasenmeters. An den Flanschen links wie rechts sind innen die MCPs montiert. *Links oben* ist die differentielle Pumpstufe gezeigt. Die Röhre wird von einer Seite aus komplett mit 10^{-3} – 10^{-2} mbar Xenon geflutet, von der gegenüberliegenden Seite wird der Laser eingekoppelt.

Ultrahochvakuum von $p_{\text{UHV}} = 10^{-6}$ mbar zu zerstören, wurde die Kapillare durch eine differentielle Pumpstufe ersetzt, die bei Bedarf mittels der Holweckstufe der Turbomolekularpumpe evakuiert werden kann. So wird gleichzeitig ein größeres Wechselwirkungsvolumen V und eine Druckdifferenz von 10^3 – 10^4 ermöglicht. Die Verbindung der Wechselwirkungszone mit der Driftstrecke erfolgt über zwei kleine Bohrungen, die gleichzeitig die Funktion der Schlitzblenden übernehmen. Die MCPs werden nicht mit Multiscalern (zum Zählen einzelner Elektronen), sondern mit einer PC-gestützten Acqiris AP240-Digitalisierungskarte (zum zeitaufgelösten Messen des Stroms) ausgelesen.

Mit diesen Umbauten konnte die Elektronenausbeute soweit erhöht werden, daß ein Einsatz als Ersatz der zweiten Kontrollschleife zur Stabilisierung der absoluten Phase am Lasersystem möglich ist. Abbildung 5.11 zeigt das Konvergenzverhalten des Fehlersignals über mehrere Schüsse. Für ein stabiles Signal sind etwa 20–30 Schuß notwendig sind, bei 1 kHz Laserrepetitionsrate wird somit eine Bandbreite von 40 Hz erreicht.

Für den praktischen Einsatz ist es wichtig, daß Schwankungen der Laser-

parameter beachtet werden können, da die genaue Form der ATI-Spektren und der beobachtbaren Asymmetrien nicht unerheblich von diesen beeinflusst wird. Hierzu bietet es sich an, einen schnellen Scan über den gesamten $\Delta\varphi = 2\pi$ -Bereich aufzunehmen und diese Daten als *Referenz* zu verwenden. Ein solcher Scan kann innerhalb einer Sekunde aufgenommen werden, man kann also davon ausgehen, daß die unbekannte Phasendrift in dieser Zeit nur minimal ist. Zur Verbesserung der Statistik wird diese Eichmessung mehrfach wiederholt. Anhand einer einfachen Mustererkennung werden die relativen Phasenfehler (Drift, Sprünge) zwischen den einzelnen Messungen herausgerechnet, um so eine rauscharme Gesamtreferenz zu erhalten. Diese dient später als Vergleichsbasis zur Zuordnung der eigentlichen Phasenmessungen.

5.3.2.3. Ausblick

Die bisher durchgeführten Optimierungen des Aufbaus sind vielversprechend, genügen den Anforderungen einer *Einzelschußmessung* jedoch noch nicht. Wie oben bereits diskutiert, ist hierzu eine weitere Erhöhung der Elektronenanzahl N_e um einen Faktor 30 nötig. Da der Einsatzbereich eines Einzelschußphasenmeters hauptsächlich bei Hochenergielasern liegt, ist eine weitere Erhöhung des Wechselwirkungsvolumens leicht möglich. Problematisch ist hierbei, daß eine damit einhergehende Vergrößerung der Schlitzblenden die Qualität der differentiellen Pumpstufe verschlechtert. Der Druck in der Drift- und Detektionskammer steigt linear mit der Querschnittsfläche A der Schlitzöffnungen, genau wie mit dem Druck p in der Wechselwirkungszone: $p_{\text{UHV}} \propto Ap$. Wegen $N_e \propto pd^4/\lambda \propto Apd$ ist es günstiger, den Fokusbereich d (und die zugehörigen Fläche der Schlitze $A \propto d^3/\lambda$) zu vergrößern, als den Wechselwirkungsdruck p . Trotzdem wird auch eine größere (und teurere) Pumpe mit entsprechender Saugleistung benötigt. Eine weitere Möglichkeit zur Entschärfung des Vakuumproblems könnte ein schneller, mechanischer Verschluß sein, der den Gasaustritt in der Zeit zwischen zwei Laserpulsen unterbindet.

Nicht gänzlich unproblematisch dürfte sich die Bestimmung des Wertes von φ aus einem aufgenommenen Spektrenpaar erweisen. Da ein Hochenergielaser mit niedrigen Repetitionsraten von ≤ 10 Hz arbeitet, entfällt die Möglichkeit, einen Satz Referenzdaten aufzunehmen. Gleichzeitig sind die zu erwartenden Schwankungen in Bezug auf Pulsdauer und -intensität deutlich höher als bei einem 1 kHz-Lasersystem. Da ein phasenstabilisierter Hochenergielaser sich tatsächlich aber noch im Entwicklungsstadium befindet, ist dies zu diesem Zeitpunkt letztlich schwer zu beurteilen. Dennoch erscheint es nötig, einen leistungsfähigen Algorithmus zu entwickeln, der das gesamte aufgenommene Spektrum zur Berechnung der Phase verwendet und hierbei möglichst noch die gleichzeitig aufgenommene Laserintensität berücksichtigt. Trotz der verbleibenden technischen Arbeiten kann man aber optimistisch sein, auch dieses Ziel zu realisieren.

6. Ionisationsexperimente in Abhängigkeit von der absoluten Phase

Seitdem intensive, phasenstabilisierte Wenigzyklenpulse zur Verfügung stehen, stellt sich natürlich sofort die Frage, wie bekannte physikalische Phänomene von der neu zugänglichen Größe der absoluten Phase abhängen. Zwei hiermit zusammenhängende Experimente werden in diesem Kapitel vorgestellt und interpretiert.



IM VORIGEN Kapitel wurde die *absolute Phase* eingeführt und dargestellt, wie ein Lasersystem funktioniert, das solch phasenstabilisierte Wenigzyklenpulse erzeugt. Nun sind der Laser und die damit generierten speziellen Pulse aber nichts als Werkzeuge, um bis dahin nicht zugängliche Meßbereiche zu eröffnen. Zwei entsprechende, voneinander sehr verschiedene Meßkampagnen werden im Folgenden vorgestellt.

6.1. NSDI in Abhängigkeit von der absoluten Phase

Nachdem in dieser Arbeit bereits Messungen zur nicht-sequentiellen Doppelionisation (NSDI) mit »gewöhnlichen« ultrakurzen Pulsen präsentiert wurden (Abs. 4.1.2), handelt es sich hier um ein weitestgehend ähnliches Experiment. Der Unterschied besteht im Abfragemedium, welches nun, der Kapitelüberschrift entsprechend, aus phasenstabilisierten Wenigzyklenpulsen besteht. Da diese mit keiner besonders hohen Repetitionsrate erzeugt werden können, mußte die Meßdauer durch eine Vereinfachung des Experimentes verkürzt werden. Aus diesem Grund wurde hier keine Koinzidenzmessung der beiden Photoelektronen durchgeführt, sondern lediglich deren Summenimpuls bestimmt.

Die Motivation zu dieser Messung besteht in der Analogie der drei Phänomene ATI [GPW⁺03, PLW⁺03], HHG [BUU⁺03, NSS⁺03] und NSDI. Hier konnte nun die erste phasenabhängige Messung überhaupt zur NSDI

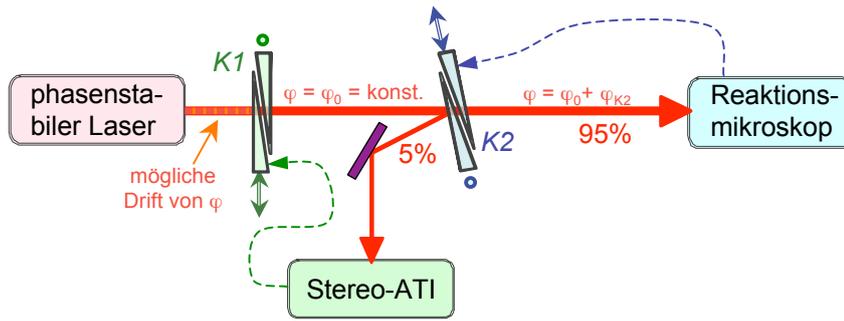


Abb. 6.1.: Prinzip des experimentellen Aufbaus zur Durchführung einer zeitlich langen Messung mit Pulsen stabilisierter Phase. Als Ergänzung des Lasersystems kontrolliert das sATI-Phasenmeter (Abs. 5.3) ein Paar von Glaskeilen ($K1$), um dahinter eine vollständig stabile CEO-Phase $\varphi = \varphi_0$ zu garantieren (keine Driften). Zudem kann hiermit nach einem Neustart des Lasers φ_0 wieder hergestellt werden. Das zweite Paar von Glaskeilen ($K2$) wird zum unabhängigen Einstellen eines relativen Phasenunterschiedes verwendet, sowie zur Dispersionsanpassung der beiden Strahlwege. 5% der Pulsenergie (etwa $15 \mu\text{J}$) sind für das sATI-Phasenmeter ausreichend.

durchgeführt werden [LRE⁺04]. Eine starke Abhängigkeit des Prozesses von der absoluten Phase φ ist wegen der Analogie zu den anderen genannten Prozessen zu erwarten und wurde kurz zuvor auch quantitativ vorhergesagt [LF04].

6.1.1. Experimenteller Aufbau

Die einzelnen Komponenten des Experiments wurden bereits beschrieben. Bei dem Lasersystem handelt es sich um das *LWS 0,1* (Abs. 5.2), das Reaktionsmikroskop ist dasselbe wie in Abs. 4.1.1. Die hier untersuchte Atomspezies ist Argon. Die Gouy-Phase wird hier nicht durch Blenden selektiert, sondern durch den Umstand, daß der Überschallgasstrahl, und somit das Wechselwirkungsvolumen extrem schmal ($\lesssim 50 \mu\text{m}$) ist. Um eine hinreichend lange Stabilität der absoluten Phase φ der Laserpulse zu garantieren, kam die in Abs. 5.3.1 beschriebene und in Abb. 6.1 dargestellte Methode zum Einsatz. Zur Erinnerung: Durch den simultanen Einsatz des φ aktiv korrigierenden Stereo-ATI Phasenmeters kann eine beliebig lange Phasenstabilität garantiert werden [SLP⁺04]. Insbesondere besteht die Möglichkeit, den gleichen Wert der Phase wieder herzustellen, falls die Stabilisierung einmal komplett versagt hat. Zu beachten ist allerdings Folgendes: Obwohl der Wert von φ im Phasenmeter bekannt ist, gilt dies nicht für den Wert von φ im Reaktionsmikroskop. Der Grund hierfür ist der nicht hinreichend genau bestimmbare Strahlengang zwischen den beiden Experimenten und der sich daraus ergebende Phasenversatz $\delta\varphi$. Wichtig ist lediglich, daß $\delta\varphi$ konstant ist und bleibt. Über ein unabhängiges Paar Glaskei-

le kann ein zusätzlicher Phasenversatz φ_{K2} hinter dem Phasenmeter eingefügt werden. Damit gilt, wenn φ_0 den Wert der absoluten Phase im Phasenmeter beschreibt, $\varphi_{\text{Experiment}} = \varphi_0 + \delta\varphi + \varphi_{K2}$. Der *tatsächliche* Wert von $\varphi_{\text{Experiment}}$ bzw. $\delta\varphi$ muß im Nachhinein aus den gemessenen Daten gewonnen werden.

6.1.2. Ionische Impulsverteilung

Die Laserintensität^{i} der 5 fs-Pulse beträgt im Fokus etwa $3,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Damit wurden für fünf verschiedene Werte von φ Impulsverteilungen aufgenommen. Zum Vergleich und als Referenz wurde unter gleichen Bedingungen noch eine Messung ohne Phasenstabilisierung durchgeführt. Die gewonnenen Summenimpulsverteilungen^{ii} sind in Abb. 6.2 gezeigt.

Die unstabilisierte Messung weist eine schwache bimodale Struktur auf (vgl. hierzu auch Abb. 4.2), die wegen der begrenzten Statistik jedoch nicht sehr gut zu erkennen ist. Bei den phasenstabilisierten Messungen ist klar eine asymmetrische Struktur in Abhängigkeit von φ zu erkennen. Insbesondere gehen die Impulsverteilungen für $\Delta\varphi = \pi$ gerade durch eine Achsenspiegelung an $p_{\parallel} = 0$ auseinander hervor. Je nach Wert der absoluten Phase erscheint das Maximum bei $\pm 1,5$ a.u. dominant, lediglich bei $\varphi = 0,2\pi$ (und wohl auch bei $\varphi = 1,2\pi$) ist eine nahezu symmetrische Struktur mit zwei getrennten Maxima zu erkennen.

Die bimodale Struktur der unstabilisierten Messung läßt vermuten, daß auch noch im Wenigzyklenbereich der dominante Mechanismus der NSDI instantane Stoßionisation des rückstreuenden Elektrons ist. Betrachtet man jedoch den aus diesem Modell erwarteten Maximalwert der Elektronenenergie von $4\sqrt{U_p}$ (in Abb. 6.2 durch grüne Pfeile angezeigt), so erscheint die Breite der gemessenen Impulsverteilung deutlich zu schmal. Ob dies an der ungenauen Bestimmung von \mathcal{E}^2 liegt oder andere Gründe hat, läßt sich aus den vorliegenden Daten leider nicht ermitteln. Impulsverteilungen der Elektronen, die weitere Auskunft geben könnten, wurden nicht aufgenommen. Klassisch betrachtet suggeriert die Breite der Impulsverteilung einen Wert von $\mathcal{E}^2 = 2,0 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Ob dieser Ansatz zur Bestimmung der Intensität bei Wenigzyklenpulsen überhaupt noch sinnvoll ist, ist angesichts deren Definition als *zyklengemittelter* Wert von $\mathcal{E} \times \mathbf{B}$ mindestens fraglich. Die zudem noch stark strukturierte Einhüllende des Laserpulses dient auch nicht eben der Entschärfung der Problematik.

^{i}Der angegebene Wert ist verhältnismäßig unsicher, da er nur aus der Fokussierungsgeometrie und den Pulsparametern bestimmt wurde. Vermutlich ist die wahre Intensität etwas niedriger. Elektronenspektren, die die Bestimmung der tatsächlichen Intensität in der Wechselwirkungszone stark vereinfachen, wurden nicht aufgenommen.

^{ii}»Summenimpuls« bezeichnet die Summe der Impulse der beiden Photoelektronen. Der Begriff ist synonym mit dem Ionenimpuls, bzw. genauer dem Impuls des Dikations.

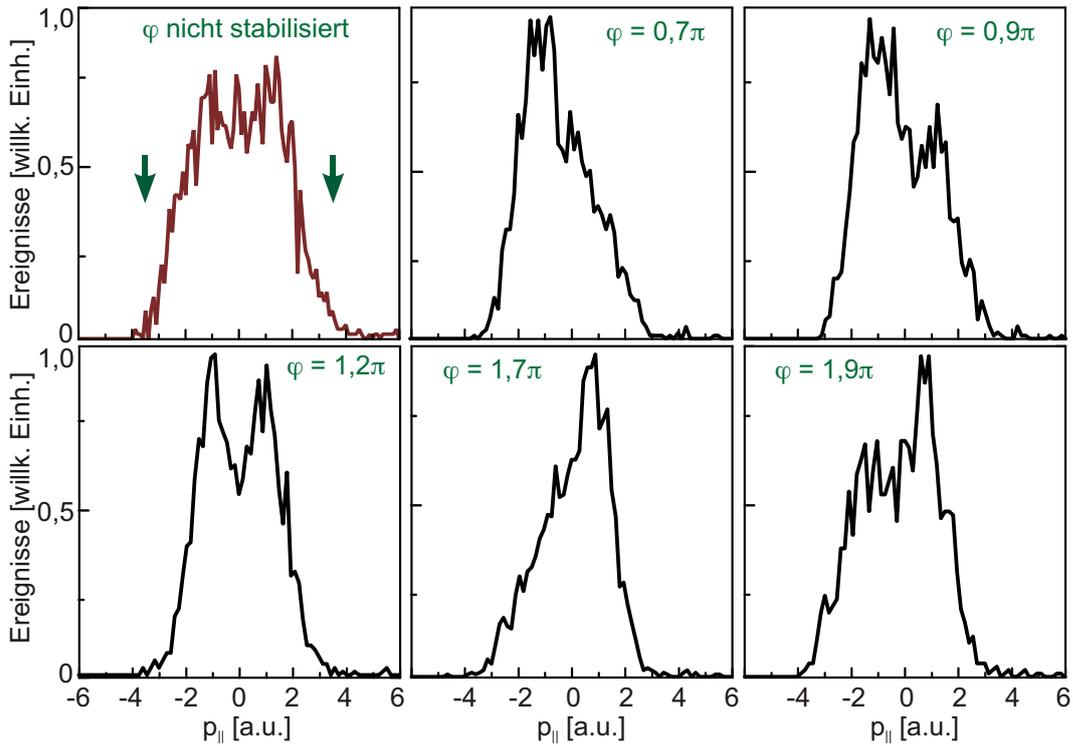


Abb. 6.2.: Experimentell beobachtete Impulsverteilung des Ar^{++} -Dikations nach der NSDI für verschiedene Werte der absoluten Phase φ . Zum Vergleich wurde eine solche Verteilung auch ohne Stabilisierung von φ aufgenommen (vgl. auch Abb. 4.2). Die grünen Pfeile sind bei $4\sqrt{U_p} = 3,53$ a.u. eingezeichnet. Die absolute Zuordnung der Werte von φ erfolgte durch Vergleich mit den theoretischen Vorhersagen aus Abs. 6.1.3 und dem Vergleich mit Abb. 6.3.

6.1.3. Klassisches Modell und Interpretation der Messung

Um die Form der Verteilungen in Abhängigkeit der absoluten Phase φ zu verstehen, werden die zu erwartenden Spektren anhand eines semiklassischen Modells numerisch berechnet. Hierzu wird davon ausgegangen, daß der dominante Mechanismus der Doppelsonisation durch instantane Stoßionisation des zurückkehrenden Photoelektrons gegeben ist. In Abs. 4.1.3.4 wurde dieser Ansatz bereits erfolgreich angewandt und genauer beschrieben. Tatsächlich ist die Übereinstimmung dieses semiklassischen Ansatzes mit der entsprechenden voll quantenmechanischen Berechnung erstaunlich gut [FLBS04].

Die Beeinflussung der zweiten Ionisationsschwelle durch das äußere \mathcal{E} -Feld (vgl. Abs. 4.1.2.3) wird hier wegen der hohen Intensität vernachlässigt. Der der Simulation zugrundeliegende Laserpuls ist auf dem Intervall $t \in [0 \dots 2\pi n/\omega]$

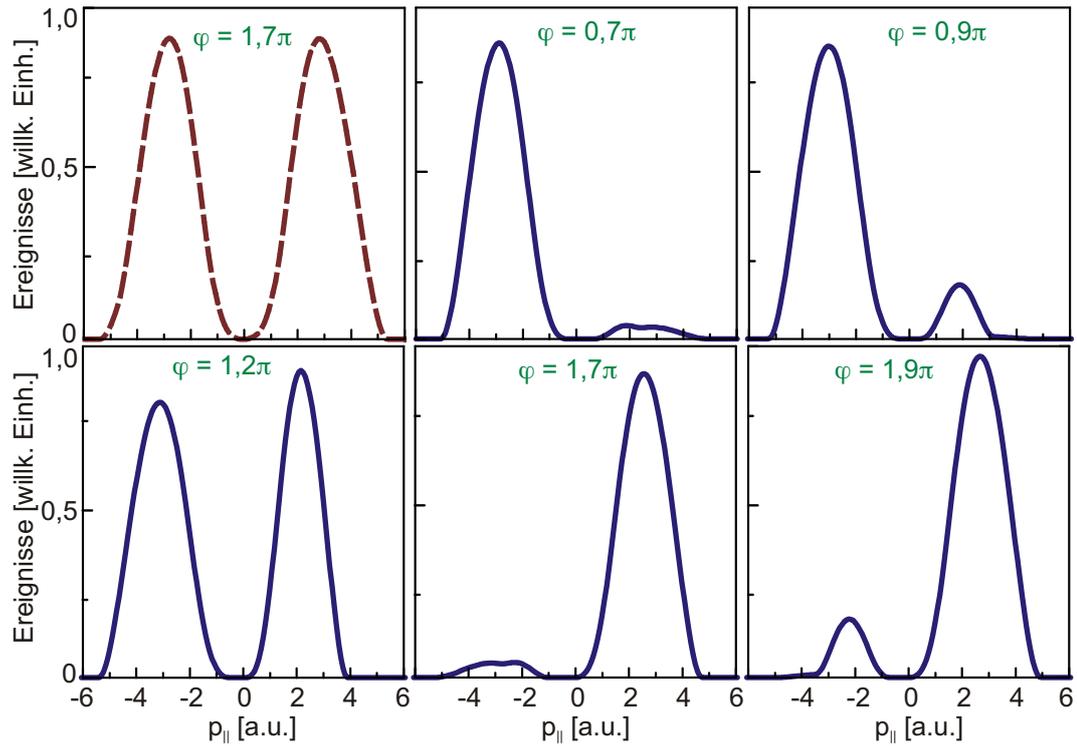


Abb. 6.3.: Numerische Simulation der Impulsverteilung des Summenimpulses für verschiedene Werte der absoluten Phase φ . Die Parameter entsprechen weitestgehend denen des Experimentes. Die Pulslänge beträgt $\tau = 3,7$ fs ($n = 4$). Lediglich im rot gestrichelten Plot *oben links* beträgt $\tau = 7,4$ fs ($n = 8$) – die deutlichen Phaseneffekte verschwinden dort fast vollständig.

durch

$$\mathcal{E}(t) = -\mathcal{E}_0 \sin^2\left(\frac{\omega t}{2n}\right) \cos(\omega t + \phi) \quad (6.1)$$

definiert^{iii}, mit n : Anzahl der Zyklen im *gesamten* Puls. Für $\lambda = 760$ nm hat ein Zyklus eine Länge von $T = 2,53$ fs, damit hat der Puls eine Halbwertsbreite von $\text{FWHM}(\mathcal{E}^2) = n \cdot 0,92$ fs. Die Einhüllende in Form eines quadrierten Sinus zu wählen, hat für die Berechnung den großen Vorteil, daß der Puls über mathematisch definierte Endpunkte verfügt; gleichzeitig unterscheidet sich diese Einhüllende qualitativ nur unwesentlich von der realistischeren (aber immer noch idealisierten) Gaußform. Als Wechselwirkungspotential zwischen den beiden Elektronen wird ein δ -Potential angenommen. Vorhergehende Berechnun-

^{iii}Legt man die Definition aus (5.1) zugrunde, so hängt hier der Wert der absoluten Phase φ von ϕ und von der Länge des Pulses ab. Für $n = 2, 4, 6, \dots$ gilt $\varphi = \phi - \pi$. Vergleiche hierzu auch die Anmerkung {v} auf Seite 78.

gen haben gezeigt, daß dies die *effektive* Wechselwirkung der beiden Elektronen miteinander vor dem Hintergrund des Ions merklich besser beschreibt als das intuitivere Coulomb-Potential [GPKB01].

Damit ergibt sich in atomaren Einheiten, analog zu (4.12), für die Wahrscheinlichkeit der Doppelionisation

$$|M(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2)|^2 \propto \int r(\tau) \cdot \delta \left(E_{\text{kin}}(t_r) - I_p^+ - \sum_{i=1}^2 \frac{(\mathbf{p}_i - \mathbf{A}(t_r))^2}{2} \right) d\tau, \quad (6.2)$$

mit $\mathbf{p}_i \equiv \mathbf{p}(e_i)$ für $i \in \{1,2\}$: Endzustandsimpulse, r : ADK-Tunnelrate aus [ADK87], \mathbf{A} : Vektorpotential des \mathcal{E} -Feldes, t_r : Stoßzeitpunkt des rückkehrenden Elektrons, I_p^+ : zweite Ionisationsenergie. Nach Summation der hiermit erhaltenen Impulsverteilung und Projektion von $\mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_2 = \mathbf{p} = (p_{\perp,x}, p_{\perp,z}, p_{\parallel})$ auf die Polarisationsachse^{iv} ergeben sich die in Abb. 6.3 dargestellten Graphen.

Man erkennt eine deutliche links/rechts-Asymmetrie, mit einem ausgeprägten Minimum bei $p_{\parallel} \approx 0$. Bei keiner Phase ist eine symmetrische Verteilung zu erkennen, lediglich bei $\varphi = 1,2\pi$ (und $\varphi = 0,2\pi$) erreichen die beiden Maxima der Impulsverteilung nahezu gleiche Werte. Eine Verdopplung der simulierten Pulsdauer von 3,7 fs auf 7,4 fs läßt die deutlichen Phaseneffekte praktisch vollständig verschwinden. Dies zeigt wieder, daß die Pulslänge ein extrem kritischer Parameter für die Beobachtung von Phaseneffekten ist.

Der Vergleich mit den gemessenen Daten erlaubt eine eindeutige Zuordnung der Phasenwerte. Das qualitative Verhalten der Kurven wird gut beschrieben, jedoch gibt es einige Details, die weniger gut übereinstimmen. Zum einen ist die *Halbwertsbreite* der gemessenen Verteilungen systematisch schmaler als die aus der Theorie. Entschärft wird das Problem ein wenig dadurch, daß NSDI-Berechnungen mit einem Kontaktpotential die maximalen Impulse bekanntermaßen überschätzen [KBRS00]. Die Schwierigkeit mit der Bestimmung der Intensität im Experiment wurde schon weiter oben angesprochen; ob sich die Diskrepanz in der Breite der Verteilung alleine hierdurch erklären läßt, oder ob noch weitere Prozesse mitwirken, läßt sich aus den vorliegenden Daten nicht abschließend klären. Das berechnete, sehr ausgeprägte *Minimum bei $p_{\parallel} \approx 0$* ist in den Meßdaten kaum zu erkennen. Dies läßt sich jedoch dadurch begründen, daß es bei der NSDI von Argon einen weiteren wichtigen Ionisationskanal gibt, der in der Berechnung nicht beachtet wurde: Stoßanregung mit anschließender Feldionisation ([FMF⁺01], vgl. auch Abs. 4.1.2). Hierbei werden bevorzugt Elektronen in entgegengesetzte Richtungen emittiert und somit Dikationen mit einem Impuls $p_{\parallel} \approx 0$ generiert. Um dies im Experiment zu differenzieren, ist eine vollständige Messung der Elektronenimpulse notwendig.

^{iv}Die Polarisationsachse ist mit \parallel gekennzeichnet, für die entsprechende Impulsverteilung gilt $f(p_{\parallel}) = \int f(\mathbf{p}) d^2\mathbf{p}_{\perp}$.

Abschließend kann gesagt werden, daß die Impulsverteilung der Dikationen im Verlauf der NSDI empfindlich von der absoluten Phase φ beeinflußt wird. Umgekehrt kann durch Kontrolle von φ die Dynamik des Ionisationsprozesses direkt gesteuert werden. Die semiklassische Analyse zeigt, daß der Wert von φ durch die zyklusabhängige Ionisationsrate, durch den Rückstoßzeitpunkt des Elektrons und durch den mit der erreichten kinetischen Energie zugänglichen Phasenraum für den inelastischen Stoß in das Verhalten der NSDI eingeht. Die Kombination dieser Effekte erlaubt die Analyse von Einzelzyklendynamik, obwohl Pulse von mehreren Zyklen Länge verwendet werden. Entsprechend gibt es Vorschläge, das rückstoßende Elektron als Abfragemedium einzusetzen, und so, durch die nun zugängliche Kontrolle über die Dynamik des Prozesses, mit Attosekunden-Auflösung zu beobachten [NLH⁺02].

Einige Detailfragen konnten noch nicht abschließend geklärt werden. Hierzu ist es naheliegend, das Experiment in ähnlicher Form zu wiederholen und diesmal die vollständige Impulsverteilung der Elektronen mitzubestimmen. Solange keine phasenstabilisierten Laser mit einer merklich höheren Repetitionsrate zur Verfügung stehen, ist dies jedoch nicht praktikabel.

6.2. Quanteninterferenz: Attosekunden-Doppelspalt

Dieses Kapitel behandelt eine neue Realisierung eines Experimentes, welches die grundlegenden quantenmechanische Phänomene, Materiewellen und Interferenz von Teilchen mit sich selbst, behandelt. Die Rede ist hierbei vom Doppelspaltexperiment mit Elektronen.

Historisch gesehen kann die Idee des Anfang des 19. Jahrhunderts erstmals durchgeführten Doppelspaltversuchs von T. YOUNG kaum überbewertet werden. Damals konnte zweifelsfrei die Wellennatur des Lichts bewiesen, sowie dessen Wellenlänge bestimmt werden. Die NEWTONsche Korpuskeltheorie war damit in ihrer damaligen Form widerlegt, tauchte dann jedoch nach der Einführung der Idee des Photons^{v} durch A. EINSTEIN bei der Erklärung des Photoeffekts etwa 100 Jahre später [Ein05] in modifizierter Form wieder auf. Mit der Arbeit von L. DE BROGLIE wurde der zuvor entwickelte *Welle-Teilchen-Dualismus* von Licht nun auf Materie übertragen [dB23, dB24]. Wenige Jahre später wurde diese kühne These durch die Experimente von C. J. DAVISSON und L. H. GERMER [DG27], sowie

^{v}Der Begriff »Photon« (nach griech. $\phi\omega\zeta$, »phos« = Licht) wurde weder von A. EINSTEIN noch von M. K. E. L. PLANCK geprägt, sondern wurde erstmals 1926 von dem Chemiker G. N. LEWIS verwandt. Allerdings verstand dieser unter dem Begriff nicht das Lichtquant, sondern verwendete ihn im Rahmen eines von ihm vorgeschlagenen (und allgemein nicht anerkannten) Modells der Wechselwirkung von Atomen mit Licht.

G. P. THOMSON und A. REID [TR27] mittels Elektronenbeugung an Kristallen eindrucksvoll bestätigt. Die erste Realisierung der Elektroneninterferenz am konzeptuell klareren Doppelspalt^{vi} gelang C. JÖNSSON erst 1961 [Jön61]. Seitdem wurden zahlreiche weitere Experimente dieser Art durchgeführt, bis hin zur Interferenz von mesoskopischen Teilchen, wie C₆₀ [ANVA⁺99]. Daß die beobachteten Effekte nicht auf der Interferenz mehrerer Teilchen beruhen, sondern auf der Interferenz jedes beobachteten Teilchens mit sich selbst, konnte mittels entsprechend diluter Elektronenstrahlen ebenfalls nachgewiesen werden [MMP76, TEM⁺89]. Als Randbemerkung sei erwähnt, daß das Doppelspaltexperiment von JÖNSSON 2002 von Lesern der *Physics World* zum »schönsten Experiment der Physik« gekürt wurde.

Bei dem gewöhnlichen Doppelspaltexperiment hat das zu untersuchende Teilchen (Photon, Elektron, ...) zwei (oder allgemein: mehrere) mögliche, räumlich getrennte Wege, auf denen es zum Detektor gelangen kann. So lange ununterscheidbar ist, welchen Weg das Teilchen eingeschlagen hat, führt die Überlagerung *aller* Möglichkeiten zur Interferenz, die bei einer Messung in Form eines räumlich periodischen Signals auf dem Detektor beobachtet wird. Ist die Welcher-Weg-Information jedoch vorhanden, wird die Interferenz unmöglich.

Der Wellencharakter wird nicht nur in einem räumlichen Doppelspaltexperiment sichtbar, sondern auch in einem zeitlichen. Physikalisch sind beide Realisierungen gleichwertig, lediglich historisch hat das Experiment im Ortsraum wegen der einfacheren Umsetzung eine weitere Verbreitung gefunden. Mit Paaren ultrakurzer Laserpulse ist es heutzutage möglich, zeitlich bimodal strukturierte Elektronenwellenpakete zu generieren, die im Verlauf ihrer Propagation Interferenzeffekte zeigen [WAL⁺02].

Hier gehen wir nun noch einen Schritt weiter: Mittels eines einzelnen Laserpulses wird ein zeitlicher Doppelspalt für ein isoliertes Elektron erzeugt [LSW⁺05]. Die Grundidee ist folgende: In dem Stereo-ATI-Spektrometer aus Abs. 4.2.1 wechselwirken Wenigzyklenpulse von kontrollierter absoluter Phase φ mit Argon-Atomen. Je nach gewählter Phase φ variiert die Anzahl der \mathcal{E} -Feld-Maxima in eine Richtung. Für $\varphi = \pi$ ergibt sich die in Abb. 6.4 suggestiv^{vii} dargestellte Situation. Photoelektronen werden bevorzugt während eines Maximums des \mathcal{E} -Feldes geboren. Je nach Phase kann es in eine Richtung *ein* solches Maximum geben, oder *mehrere*. Gibt es gerade *zwei*, so haben wir den zeitlichen Doppelspalt realisiert. Aufgrund der Stereo-Konfiguration des Experimentes ist es sogar möglich, das Verhalten an Einzelspalt und Dop-

^{vi}Tatsächlich wurde kein Doppelspalt, sondern ein Gitter mit einer Gitterkonstante von 1 μm verwendet.

^{vii}Die Wahl von φ gilt nur für diese Abbildung. Tatsächlich liegt die Phase für maximale Interferenz (keine Interferenz) nicht bei $\varphi = \pi$ ($\varphi = 0$), sondern etwa bei $\varphi = 3\pi/2$ ($\varphi = \pi/2$). Dies liegt an den Elektronentrajektorien, die weniger trivial sind als es sich in einer didaktischen Skizze darstellen läßt.

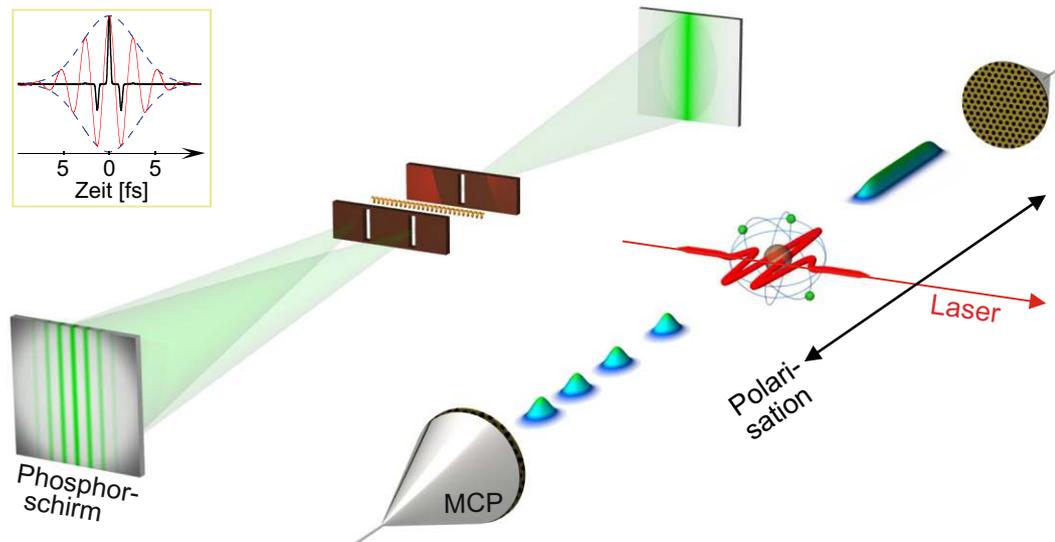


Abb. 6.4.: Doppelspaltexperimente »damals und heute«. *Rechts* ist das im Text beschriebene Experiment suggestiv skizziert (vgl. Anm. {vii} auf S. 102): Ein Wenigzyklenpuls mit bekannter Phase φ ionisiert ein Atom. Das Photoelektron wird in Polarisationsrichtung emittiert und dort zu einer TOF-Messung detektiert. Je nachdem, ob mehrere (hier nach *unten* gerichtete) Ionisationsfenster in Form eines \mathcal{E} -Feld-Maximums zur Verfügung stehen oder nur eines (nach *oben* gerichtet), können Interferenzen beobachtet werden oder eben nicht. *Links* ist das entsprechende räumliche Analogon des Experimentes zu sehen. *Links oben* ist ein Laserpuls von 5 fs dargestellt, zusammen mit der entsprechenden Ionisationswahrscheinlichkeit für die experimentellen Bedingungen. Man sieht, daß wegen der hohen Nichtlinearität der Ionisation die Anzahl der effektiven Ionisationsfenster deutlich kleiner ist als die der \mathcal{E} -Feld-Maxima.

pelspalt gleichzeitig (jeweils in gegenüberliegende Richtungen) zu beobachten. Quantenmechanisch interessant ist zudem, daß jeweils nur genau ein Elektron »durch den Doppelspalt läuft«: Es wird lediglich einfache Ionisation beobachtet (ATI), und der »Spalt« wirkt für jedes Atom bzw. Elektron unabhängig, d.h. es findet keine Interferenz von Elektronen verschiedener Ursprungsatome statt.

Die oben verwendete Darstellung beschreibt die Idee des Experimentes sehr gut, ist jedoch in einigen Punkten simplifizierend und in Bezug auf einige Details leicht irreführend. Im Folgenden wird die eigentliche Messung dargestellt und etwas formaler interpretiert, sowie durch Vergleich mit zugehörigen Berechnungen verifiziert.

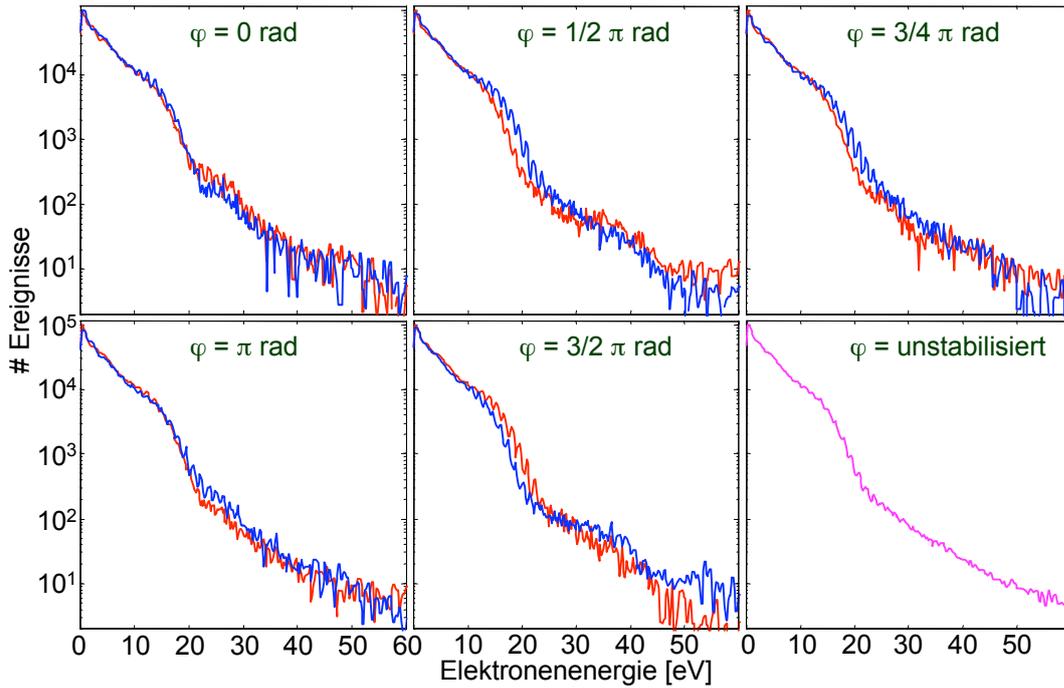


Abb. 6.5.: ATI-Spektren in Argon für verschiedene Werte der absoluten Phase φ . Die Laserintensität beträgt etwa 10^{14} W/cm^2 bei einer Pulslänge von $\tau \approx 6 \text{ fs}$. Im Bereich von $10 \dots 30 \text{ eV}$ ist eine deutliche, phasenabhängige Peak-Struktur zu erkennen. Diese verschwindet mit dem Deaktivieren der Phasenstabilisierung nahezu vollständig (*rechts unten*).

6.2.1. Experimentell aquirierte Daten

Im Gegensatz zu ATI-Spektren von »langen« Laserpulsen (20 fs und mehr), weisen solche von Wenigzyklenpulsen praktisch keine der typischen ATI-Maxima auf [GPW⁺03]. Der Grund hierfür ist nicht, daß die Photoemission von einem einzelnen Zyklus dominiert wird, sondern liegt im Volumeneffekt begründet. Diese Intensitätsmittelung der ATI-Spektren über die Fokusgeometrie findet natürlich auch bei langen Pulsen statt, jedoch wird sie dort durch Resonanzeffekte aufgehoben, die bei Wenigzyklenpulsen offenbar keine Rolle spielen. Ein anderer Erklärungsansatz für dieses Phänomen orientiert sich an einem bei der HHG beobachteten Phänomen, nämlich der phasenabhängigen Rot- und Blauverschiebung der Peaks [BUU⁺03, NSS⁺03]. Bei einer zufälligen Mittelung über verschiedene Phasen schmiert dieser Effekt jede feine Struktur aus.

Die Situation sieht anders aus, wenn die absolute Phase φ stabilisiert ist. In Abb. 5.6 (S. 85) erkennt man im niederenergetischen Bereich deutliche Modulationen für bestimmte Werte von φ . Nun ist die L/R-Darstellung

in diesem Kontext nicht besonders hilfreich. Abbildung 6.5 zeigt daher die zugehörigen ATI-Spektren, separat für den linken (L) und rechten (R) Detektor des Stereo-ATI-Spektrometers^{viii}. Im niederenergetischen Bereich, etwa zwischen 10...25 eV sind deutlich Peaks zu erkennen, deren Kontrast stark von φ abhängt. Um dies noch besser sichtbar zu machen, wurde der relevante Energiebereich der modifizierten Spektren in Abb. 6.7 als Falschfarbenplot für alle Phasen φ dargestellt. Die Modifikation der Spektren dient der Verbesserung der Darstellung der Peaks und ihres Kontrastes^{ix} und besteht darin, den hier nicht interessierenden exponentiellen Abfall der ATI-Spektren zu beseitigen^{x}. Zusätzlich zeigt Abb. 6.6 für ausgewählte Werte von φ einen Schnitt durch Abb. 6.7.

Verschiedene Effekte können aus dieser optimierten Darstellung entnommen werden. Der *Abstand* der Peaks beträgt etwa 1,5 eV, was der Photonenenergie entspricht. Im Kontext von ATI ist dies nicht ungewöhnlich, jedoch handelt es sich hierbei, wie weiter unten diskutiert werden wird, *nicht* um die typischen ATI-Maxima. Auffällig ist auch die *Periode* des Peakkontrastes von $\Delta\varphi = \pi$. Anders formuliert, und beim vergleichenden Betrachten der beiden Detektoren unmittelbar sichtbar, heißt dies, daß die Photoelektronenspektren in eine Richtung einen maximalen Peakkontrast aufweisen, wohingegen in der entgegengesetzten Richtung keine Peakstruktur (bzw. ein minimaler Kontrast) zu sehen ist. In Abb. 6.6 erkennt man zusätzlich zu der Peakstruktur noch eine energieabhängige Modulation des Peakkontrastes. Die *Halbwertsbreite* dieser Einhüllende kann zu etwa 4 Perioden, also 6 eV abgeschätzt werden. Für höhere Energien wird das Peak-Muster ungleichmäßiger, überhaupt sind nur im Energiebereich von 10...30 eV Peaks zu beobachten. Bemerkenswert ist aber vor allem die *phasenabhängige Position* der Peaks: diese verschiebt sich in der Energie insgesamt um eine halbe Periode.

Der letzte Punkt, also die Phasenabhängigkeit der Position der Peaks, erklärt sofort, warum ohne Phasenstabilisierung keine erkennbaren Maxima aufgelöst werden: Bei einer solchen Messung wird statistisch über alle Phasen gemittelt und die Peaks summieren sich destruktiv.

^{viii}Die Informationen sind zum Teil redundant: Ein Laserpuls von $\varphi = \varphi_0$ ist für R ein eben solcher, wohingegen er für L als ein Puls mit $\varphi = \varphi_0 + \pi$ erscheint. D. h., die Detektoren liefern, bis auf einen Phasenversatz von π , das gleiche Signal. Ein Scan über $\Delta\varphi = 2\pi$ ist demnach überflüssig, der halbe Bereich wird doppelt gemessen. Tatsächlich ist diese Eigenschaft des Aufbaues jedoch seine große Stärke, da experimentelle Unsicherheiten sofort erkannt werden und eine intrinsische Kontrollinstanz vorhanden ist.

^{ix}Der Kontrast ist der Unterschied von minimaler und maximaler Intensität: $K = (I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min})$.

^{x}Die Nachbearbeitung im Einzelnen: An das über alle Phasen φ gemittelte ATI-Spektrum wird eine streng monotone Fitfunktion angepaßt. Die einzelnen phasenabhängigen Spektren werden nun jeweils durch diese Fitfunktion dividiert.

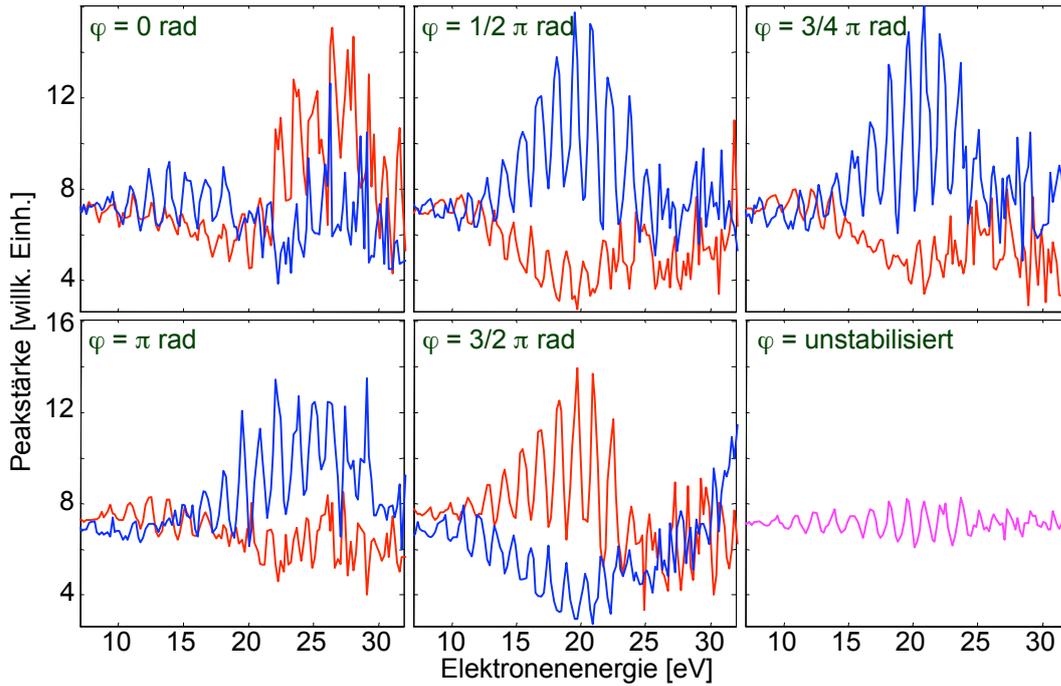


Abb. 6.6.: Modifizierte ATI-Spektren aus Abb. 6.5. Gezeigt sind die unabhängig aufgenommen Signale des linken (rot) und rechten (blau) Detektors. Wendet man die gleiche Nachbearbeitung auf das ohne Phasenstabilisierung aufgenommene Spektrum an, so ergibt sich das Bild *unten rechts*, welches hier nur der Vollständigkeit halber gezeigt ist.

6.2.2. Interpretation und Modellbeschreibung

Das hier verwendete Modell zur Beschreibung der beobachteten Peakstrukturen ist, wie schon in der Einleitung besprochen, das eines temporalen Doppelspalts. Die Peakstruktur wird hier folglich nicht als ATI-Spektrum interpretiert, sondern als Interferenzeffekt zweier zeitlich separierter Komponenten der Wellenfunktion $|\Psi(t)\rangle$ des Photoelektrons.

Das Bild des zeitlichen Doppelspalts erlaubt in Analogie zum räumlichen Doppelspalt auch eine Erklärung der phasenabhängigen Position der Peakstruktur. So wie bei dem gewöhnlichen optischen Versuch ein Phasenschieber (bspw. eine Glasplatte) vor einem der Spalte das Interferenzmuster räumlich verschiebt, so passiert dies auch hier, nun aber im Energierraum. Die Phase des Elektrons ist gemäß (2.16) gegeben durch

$$\Theta = \frac{S}{\hbar} = -\frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^{\infty} \frac{p^2(t)}{2m_e} dt = -\frac{e^2}{2m_e \hbar} \int_{t_0}^{\infty} A^2(t) dt, \quad (6.3)$$

mit der Wirkung S und der Elektronenmasse m_e . Es ist klar, daß Θ über die

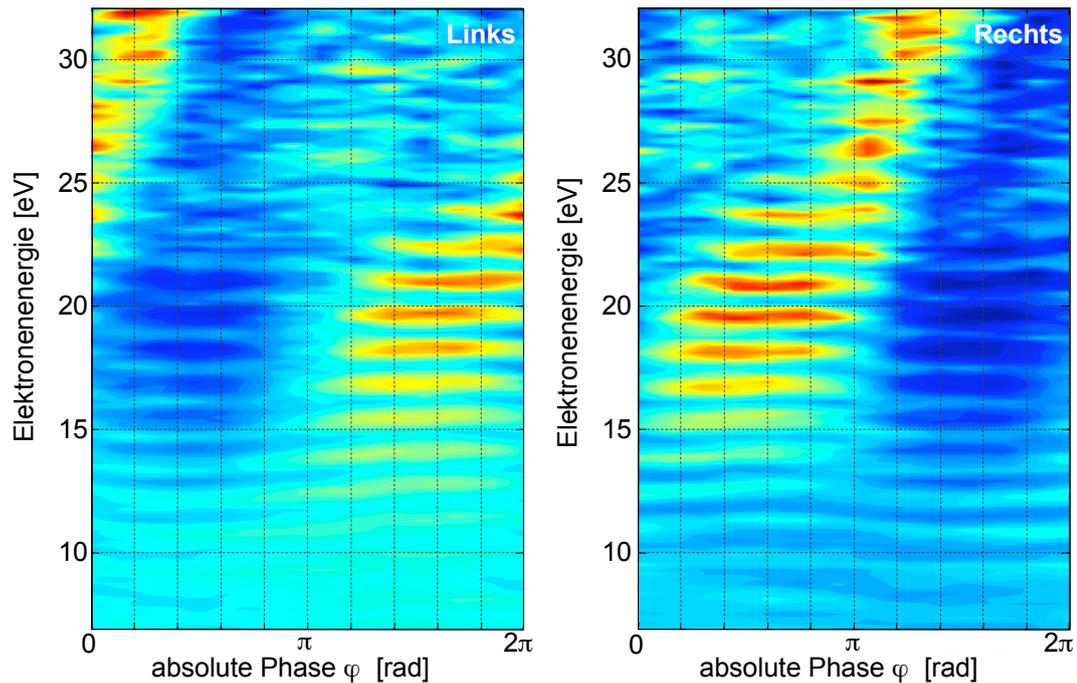


Abb. 6.7.: Modifizierte ATI-Spektren aus Abb. 6.5. Die Farbcodierung repräsentiert die Elektronenzählrate (blau: gering, rot: hoch). Gezeigt sind die unabhängig aufgenommen Signale des *linken* und *rechten* Detektors. Sehr deutlich ist ein phasenabhängiger Kontrast der Peaks zu erkennen, ebenso wie eine phasenabhängige Rot- bzw. Blauverschiebung der Peaks.

Form von $A(t)$ kritisch von φ abhängt, sowie vom Geburtszeitpunkt t_0 des Elektrons.

Tatsächlich wird im Experiment sogar ein quantenmechanischer Einelektroneneffekt beobachtet, da die experimentellen Bedingungen überhaupt keine andere Möglichkeit zulassen: Die Wahrscheinlichkeit für Doppelionisation ist bei den verwendeten Intensitäten mehrere Größenordnungen kleiner als die der einfachen Ionisation. Und obwohl sich zahlreiche Atome im Laserfokus aufhalten, kann Interferenz zwischen Elektronen verschiedener Atome ausgeschlossen werden: Auf der Skala der deBroglie-Wellenlänge des Elektrons sind fremde Atome sehr weit entfernt und noch dazu zufällig angeordnet. Abschließend kann die Einelektronenhypothese durch Vergleich der gemessenen Daten (Abb. 6.7, R) mit einer numerischen Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung in drei räumlichen Dimensionen bestätigt werden. Die Berechnung wurde von D. BAUER für die experimentellen Bedingungen in der Näherung eines einzelnen aktiven Elektrons durchgeführt [Bau05] und ist in Abb. 6.8 (links) gezeigt. Im Vergleich mit Abb. 6.7 (rechts) werden alle

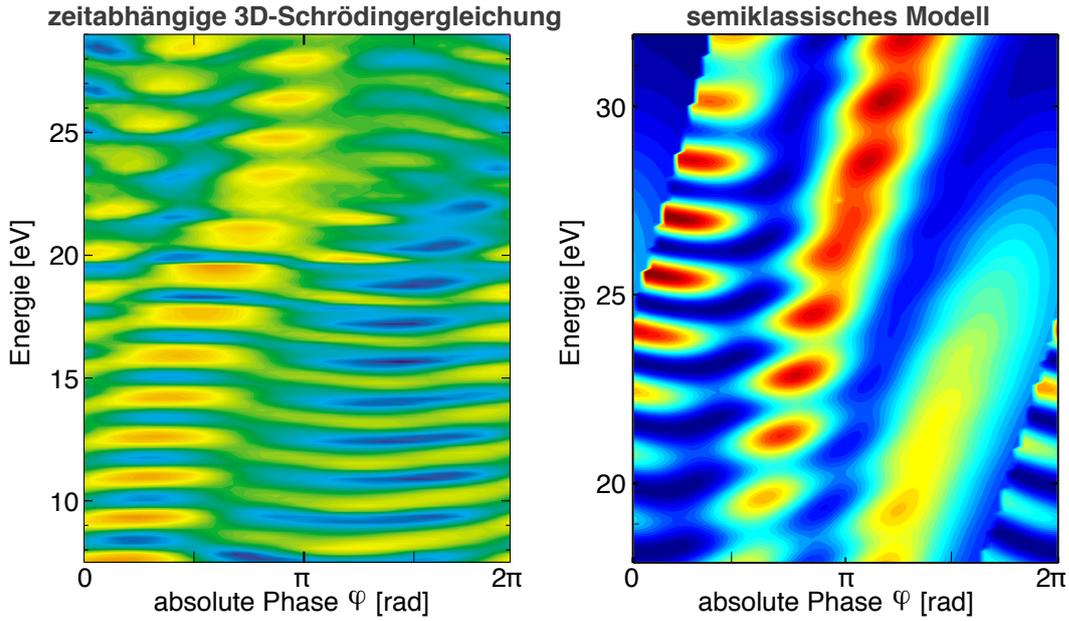


Abb. 6.8.: *Links*: Numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung für die experimentellen Bedingungen (aus [LSW⁺05]). *Rechts*: Numerische Lösung des semiklassischen Modells (aus [Lin04]). Es wurde jeweils nur ein aktives Elektron betrachtet. Die berechneten ATI-Spektren wurden der gleichen Nachbearbeitung unterzogen, wie die in Abb. 6.7. Die Berechnungen müssen mit den experimentellen Daten im rechten Teil dieser Abbildung verglichen werden.

relevanten Eigenschaften des Experimentes von der Berechnung reproduziert. Damit ist klar, daß die Dynamik eines einzelnen Elektrons für die beobachteten Effekte verantwortlich ist.

Zur Interpretation der Physik ist die obige Berechnung, über die Aussage des Einelektroneneffektes hinaus, wenig hilfreich. Darum wird im Folgenden wieder auf das bewährte und anschauliche, semiklassische Modell aus Abs. 2.2.1 zurückgegriffen. Für das hier behandelte Problem sind die Vorhersagen beider Modelle qualitativ ähnlich. Idealisierte Voraussetzungen führen jedoch zu quantitativen Verschiebungen zwischen Modell und Experiment.

Der Ausgangspunkt des semiklassischen Modells ist die Emission eines Elektrons in das Kontinuum zu einem Zeitpunkt t_0 mit dem Anfangsimpuls $p_0 = 0$. Da die gesamte Energie des Elektrons somit aus der Beschleunigung im äußeren Feld herrührt, gilt

$$p - eA(t_0) = 0, \quad (6.4)$$

mit dem Vektorpotential des \mathcal{E} -Feldes $A(t)$, der Elektronenladung $e = -|e|$

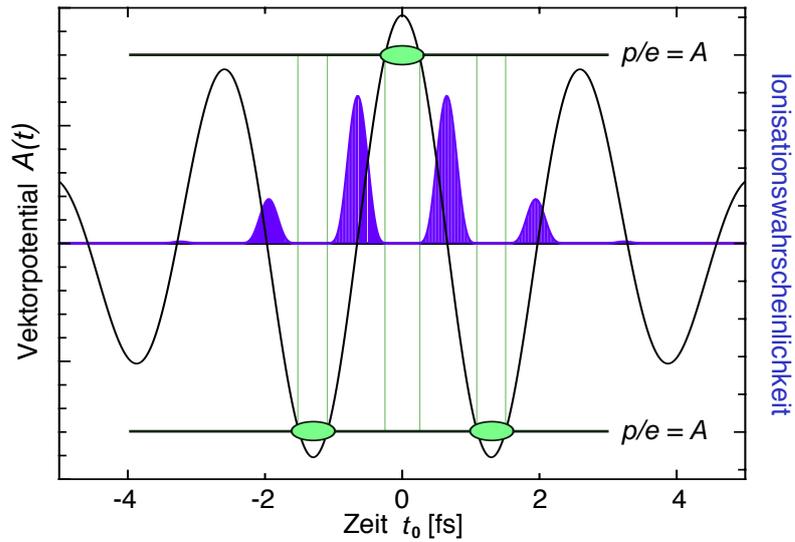


Abb. 6.9.: Graphische Lösung von Gleichung (6.4) für einen sin-artigen Puls ($\varphi = 3\pi/2$). Gezeigt sind das Vektorpotential $A(t) \propto \int \mathcal{E}(t)dt$ und die Lösungen $t_0(p)$ für einen gegebenen Wert des Impulses p (horizontale Linien). In diesem Beispiel erhält man einen Doppelspalt in die positive Richtung (beachte: $e = -|e|$) und einen einfachen Spalt in die entgegengesetzte Richtung. Jeder »Spalt« besteht eigentlich aus zwei Spalten (grün). Zusätzlich ist die momentane Ionisationswahrscheinlichkeit (blau) als Funktion der Zeit gezeigt.

und dem Impuls des Elektrons am Detektor p .

Bei der gewählten Laserintensität beträgt die ponderomotive Energie $U_p \approx 6 \text{ eV}$. Die beobachteten Peaks liegen nun größtenteils jenseits des für direkte Elektronen klassisch erlaubten Bereiches von $2U_p$. Dieses Problem wird dadurch umgangen, daß die Lösungen $t_0(p)$ von Gl. (6.4) in einem Keldysh-Modell (s. Abs. 2.3.1) komplexwertig sind, so daß auch klassisch verbotene Elektronenimpulse zugänglich werden. Die Symmetrie der Lösungen wird hierdurch jedoch nicht beeinflusst, genausowenig wie die qualitativen Vorhersagen der Rechnung.

Abbildung 6.9 zeigt einen graphischen Berechnung zur Lösung von (6.4), an der das Wesen des Doppelspalts deutlich wird. Für das Vektorpotential $A(t)$ gilt $\mathcal{E}(t) \propto -\partial A(t)/\partial t$; das Vektorpotential eines sinus-artigen Pulses ist somit kosinus-artig. Für einen gegebenen Wert von p werden alle möglichen (realen) Zeitpunkte t_0 durch die Schnittpunkte von $A(t)$ mit einer horizontalen Linie bei $A = -p/e$ definiert. Elektronen, die an den so ermittelten Zeiten geboren werden, können prinzipiell interferieren. Für einen maximalen Kontrast der entstehenden Interferenzstruktur ist es aber wesentlich, daß die verschiedenen Beiträge von gleicher Amplitude sind, die Welcher-Weg-Information also minimal ist. Die Wichtung des Beitrages eines bestimmten t_0 ist proportio-

nal der Ionisationswahrscheinlichkeit zu diesem Zeitpunkt. Konventionsgemäß liegt das Maximum der Einhüllenden bei $t = 0$, so daß ein maximaler Kontrast typischerweise (aber nicht ausschließlich) für Lösungen zu erwarten ist, für die gilt $t_{0,1} \approx -t_{0,2}$. Wegen der starken Nichtlinearität des Prozesses erfolgt Ionisation praktisch nur für $|t_0| < 2\pi/\omega$. Im Beispiel des sinus-artigen Pulses ($\varphi = 3\pi/2$) aus Abb. 6.9 ergibt sich so ein Doppelspalt in positive Richtung (R) und ein Einfachspalt in die Gegenrichtung (L). Ein Vergleich mit Abb. 6.6 zeigt tatsächlich einen maximalen Kontrast in die eine und einen minimalen Kontrast in die Gegenrichtung. Daß die Peakstruktur in den experimentellen Daten nicht vollständig verschwindet, liegt an einer immer noch etwas zu großen Pulslänge.

Ein weiteres Detail, welches Abb. 6.9 zeigt, ist, daß jeder »Spalt« sich tatsächlich aus zwei Teilspalten mit einem Abstand im sub-fs-Bereich zusammensetzt. Der Abstand hängt von der Energie ab und kann aus dem Keldysh-Modell berechnet werden. Dieser Paar-Charakter der Spalten ist verantwortlich für die beobachtete Einhüllende des Interferenzmusters aus Abb. 6.6. Aus der dort entnommenen Halbwertsbreite von $\Delta E \approx 6 \text{ eV}$ kann ein Abstand dieser Teilspalte zu $\Delta t = h/\Delta E \approx 600 \text{ as}$ abgeschätzt werden.

Bei allen Stärken und Vorzügen des klassischen Modells sollte man dennoch einige Schwächen nicht verschweigen. Das klassische Energielimit von $2U_p$ wurde bereits angesprochen. Hinzu kommt, daß das Modell die Energieabhängigkeit des Kontrastes nicht korrekt vorhersagt. Interessanterweise ist dies keine Folge der klassischen Betrachtungsweise an sich, sondern liegt an der Vernachlässigung der Beugung am Atom bzw. Ion. Selbst eine Lösung der eindimensionalen Schrödingergleichung weist hierbei ein ähnliches Verhalten auf, da auch dort Beugung nicht beachtet werden kann. Eine konkrete Folge dieses Effektes zeigt sich in der Diskussion von Abb. 6.9: die Vorhersage eines maximalen Kontrastes in positive Richtung (R) ist gerade das Gegenteil der Beobachtung (Abb. 6.6, $\varphi = 3\pi/2$)!

Trotz der erwähnten Probleme werden alle Phänomene durch die klassisch-intuitive Beschreibung qualitativ korrekt wiedergegeben und erlauben eine eingängige Betrachtungsweise dieses originellen Doppelspaltexperimentes im Zeitraum. Dies ist umso faszinierender, da grundlegende, quantenmechanische Konzepte realisiert werden (Materiewellen, Einteilcheninterferenz). Im Kontext der Kurzzeitinterferometrie soll nicht unerwähnt bleiben, daß in diesem Experiment die Elektronendynamik mit Attosekundengenauigkeit beleuchtet wurde. Interferometrische Techniken dieser Art lassen sich also auch in der Attosekundenphysik erfolgreich anwenden.

7. Zusammenfassung und Ausblick



IN BEDEUTENDER Teil dieser Arbeit war der Analyse der Ionisationsdynamik der Atome / Moleküle Ar, Ne, N₂ und O₂ gewidmet. In allen Fällen konnte durch hochdifferentielle Reaktionsmikroskop-Messungen die Elektronenkorrelation bestimmt und hieraus der zugrundeliegende Mechanismus der Doppelsonionisation bestimmt werden. Es hat sich gezeigt, daß der dominante Mechanismus der NSDI immer die Stoßionisation des rückkehrenden Elektrons ist, was eine beeindruckende Bestätigung des semiklassischen Rückstreumodells darstellt. Dies gilt insbesondere auch in Intensitätsbereichen, die nach klassischen Gesichtspunkten keine NSDI ermöglichen sollten, sowie bei Molekülen, wo der Mechanismus aufgrund der komplexeren geometrischen Struktur nicht von vorneherein einsichtig ist. Durch einfache Erweiterungen des 3-Stufen-Modells ist es sogar möglich, auch in diesen Fällen eine intuitive Beschreibung der Physik zu erhalten.

Bei den entsprechenden Experimenten mit Pulsen im Bereich von wenigen Zyklen Länge hat sich eine starke Abhängigkeit der NSDI von dem neu zugänglichen Laserparameter der absoluten Phase φ gezeigt. Durch gezielte Wahl der Phase ist es sogar möglich, die Rückstredynamik exakt zu steuern, womit eine Sonde für inneratomare Prozesse zur Verfügung steht, die mit einer Genauigkeit im Attosekundenbereich operiert. Ähnlich verhält es sich mit ATI-Experimenten in diesem Parameterbereich: Der Ionisationszeitpunkt t_0 direkter Elektronen ist der einzige Parameter, der unter sonst identischen Bedingungen die Energie der Photoelektronen bestimmt. Zwar ist umgekehrt die gemessene Elektronenenergie noch kein eindeutiges Maß für t_0 , aber unter Zuhilfenahme der Kontrolle über φ können die möglichen Elektronentrajektorien und Ionisationszeiten so manipuliert werden, daß Interferenzen kontrolliert ein- und ausgeschaltet werden. Dieses Verhalten läßt sich durch eine Realisierung eines Doppelspaltens im Zeitraum interpretieren, an dem die einzelnen Elektronen mit sich selbst interferieren. Die zugrundeliegenden Zeitkonstanten bewegen sich ebenfalls im Bereich einiger 100 as.

Der ATI-Doppelspalt ist nur ein Beispiel, in dem die Beschreibung des semiklassischen 3-Stufen-Modells verlassen werden muß, weil rein quantenmechanische Prozesse eine Rolle spielen (hier vor allem die Eigenschaften von Materiewellen). Ein anderes Beispiel dieser Art wurde in dieser Arbeit auch untersucht. Dabei handelt es sich um einen völlig anderen Parameterbereich:

Mit Femtosekundenpulsen von 40 fs Dauer wurde die ATI an Alkaliatomen studiert. Dabei wurden erstmals bis zu 13 ATI-Peaks beobachtet. Wegen der niedrigen Ionisationsschwelle und der starken Kopplung der energetisch tiefer gelegenen Zustände, ist der Einfluß der atomaren Niveaustuktur auf die ATI-Spektren, im Gegensatz zum Fall der Edelgase, nicht unerheblich. Eine komplexe Substruktur der ATI-Maxima ist die Folge.

Experimentelle Arbeiten, die mehr dem Bereich der Technikentwicklung zuzuordnen sind, wurden im Bereich der Laserentwicklung durchgeführt. Einmal wurde ein hochrepetitives (100 kHz) Ti:Saphir-System soweit modifiziert, daß die Pulslänge von 35 fs auf unter 10 fs gedrückt werden konnte, womit der Bereich weniger Schwingungszyklen erreicht wurde. Die Spitzenleistung lag in diesem Fall mit knapp 400 MW deutlich über dem entsprechenden Wert vor den Modifikationen. Auf der anderen Seite wurde das sogenannte Stereo-ATI-Phasenmeter soweit modifiziert, daß Einzelschußphasenmessungen in allernächster Zeit möglich sein sollten. Bereits erfolgreich eingesetzt wurde das Prinzip zur Langzeitstabilisierung und Wiederherstellung der absoluten Phase bei langwierigen Meßkampagnen.

Mehrere spannende Experimente ergeben sich praktisch von selbst für die nahe Zukunft. Wegen der geringen Ereignisrate wurde bei den phasenabhängigen NSDI-Messungen nicht die volle Dynamik der beteiligten Elektronen mitgemessen. Selbst eine hierum ergänzte Wiederholung des Experimentes unter ansonsten identischen Bedingungen könnte für wertvolle Einsichten in noch ungeklärte Details der zugrundeliegenden Physik sorgen. Mit der Weiterentwicklung des Lasersystems (höhere Repetitionsrate, bessere Stabilität) haben sich die experimentellen Bedingungen bereits soweit verbessert, daß eine solche Messung tatsächlich seit Anfang 2006 läuft. Auch die ATI-Experimente an Alkaliatomen sind als Vorabexperimente zu verstehen, um dann mit Wenigzyklenpulsen und kontrollierter absoluter Phase wiederholt zu werden. Wegen der Intensitätsabhängigkeit der Beeinflussung der inneratomaren Niveaus, insbesondere wegen des Effekts der momentanen \mathcal{E} -Feldstärke, sind dramatische Einflüsse in Abhängigkeit von φ zu erwarten. Zudem besteht mit solch extrem kurzen Pulsen auch die Möglichkeit, bisher unerreichte Intensitäten auf die Atome einwirken zu lassen. Es ist interessant zu erfahren, ob sich unter diesen Bedingungen ebenfalls ein Plateau ausbildet, wie dies bei Edelgasen der Fall ist.

Schließlich wartet auch das Einzelschußphasenmeter noch auf die Fertigstellung eines passenden Lasers, der phasenstabilisierte Wenigzyklenpulse im Terawatt-Bereich erzeugt. Die Entwicklungen der OPCPA der jüngsten Zeit lassen dies als berechtigte Erwartung für die nächsten Jahre erscheinen. Wenn in Experimente mit solch enormen Intensitäten durch Kontrolle der absoluten Phase auch noch die genaue Form des \mathcal{E} -Feldes kontrollierbar ist, öffnet sich tatsächlich ein Tor zu zahllosen neuen Experimenten und Anwendungen.

A. Atomare Einheiten

Die in der Theorie gerne und viel verwendeten atomaren Einheiten (gewöhnlich mit »a. u.« abgekürzt) wurden 1928 von D. R. HARTREE eingeführt [Har28]. Sie orientieren sich am Wasserstoffatom und sind so gewählt, daß mehrere Naturkonstanten gerade eins sind: $e = m_e = \hbar = 1$. Wegen der mangelnden »echten« Dimensionsangaben sind sie dem Experimentator für gewöhnlich ein Greuel. Bei komplexeren Simulationen können sie die Berechnung aber soweit erleichtern, daß es sich oft lohnt, das gesunde Mißtrauen gegen sie fallen zu lassen. Als Orientierungshilfe sind in der folgenden Tabelle die wichtigsten Beziehungen zusammengefaßt.

Tabelle A.1.: Atomare Einheiten und ihre Entsprechungen in SI-Einheiten.

Eigenschaft	Symbol	Formel	SI
Zeit	$t = 1$ a.u.	$= \frac{\hbar^3}{m_e e^4} =$	$2,418885 \cdot 10^{-17}$ s
Länge	$l = 1$ a.u.	$= \frac{\hbar^2}{m_e e^2} =$	$5,291772 \cdot 10^{-11}$ m
Geschwindigkeit	$v = 1$ a.u.	$= \frac{e^2}{\hbar} = \frac{c}{\alpha} =$	$2,187690 \cdot 10^6$ m/s
Masse	$m = 1$ a.u.	$= m_e =$	$9,109534 \cdot 10^{-31}$ kg
Impuls	$p = 1$ a.u.	$= \frac{m_e e^2}{\hbar} =$	$1,992884 \cdot 10^{-24}$ Ns
Energie	$E = 1$ a.u.	$= \frac{m_e e^4}{\hbar^2} =$	$4,360486 \cdot 10^{-18}$ J
Intensität	$I = 1$ a.u.	$= \frac{m_e^4 c e^{10}}{8\pi \hbar^8} =$	$3,509501 \cdot 10^{16}$ W/cm ²
elektr. Feldstärke	$\mathcal{E} = 1$ a.u.	$= \frac{m_e^2 e^5}{\hbar^4} =$	$5,142247 \cdot 10^{11}$ V/m
magn. Feldstärke	$B = 1$ a.u.	$= \frac{m_e^2 e^3}{\hbar^3} =$	$2,350537 \cdot 10^5$ T
Ladung	$Q = 1$ a.u.	$= e =$	$1,602189 \cdot 10^{-19}$ C
Spannung	$U = 1$ a.u.	$= \frac{m_e e^3}{\hbar^2} =$	$27,21160$ V

Der Name der Einheiten rührt daher, daß sie gerade Größen des Elektrons im *Grundzustand des Wasserstoffatoms* beschreiben. So entspricht die atomare Längeneinheit gerade dem Bohrsche Radius, die atomare Zeiteinheit der Periodendauer der Keplerbahn, die atomare Energieeinheit der zweifachen Ionisationsenergie.

Publikationsliste

- M. G. Schätzel, *Aufbau eines nichtkollinearen Optisch-Parametrischen Verstärkers zur Ultrakurzzeit-spektroskopie an freien, massenselektierten Clustern*, Fakultät für Physik der Albert-Ludwigs-Universität Freiburg, Diplomarbeit (2001).
- F. Lindner, W. Stremme, M. G. Schätzel, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Hartmann und L. Strüder, *High-order harmonic generation at a repetition rate of 100 kHz*, Physical Review A, **68**, 013814 (2003).
- F. Lindner, M. G. Schätzel, F. Grasbon, G. G. Paulus, A. Dreischuh und H. Walther, *Dispersion control in a 100 kHz repetition rate 35-fs laser system*, 12th International School on Quantum Electronics: Laser Physics and Applications, Varna, Bulgaria, Proceedings of SPIE **5226**, 38 (2003).
- X. Liu, H. Rottke, E. Eremina, W. Sandner, M. G. Schätzel, G. G. Paulus und H. Walther, *Influence of Molecular Structure on Double Ionization of N₂ and O₂ by High Intensity Ultrashort Laser Pulses*, Physical Review Letters, **92**, 173001 (2004).
- X. Liu, H. Rottke, E. Eremina, W. Sandner, E. Goulielmakis, K. O’Keeffe, M. Lezius, F. Krausz, F. Lindner, M. G. Schätzel, G. G. Paulus und H. Walther, *Nonsequential Double Ionization at the Single-Optical-Cycle Limit*, Physical Review Letters, **93**, 263001 (2004).
- M. G. Schätzel, F. Lindner, G. G. Paulus, H. Walther, E. Goulielmakis, A. Baltuška, M. Lezius und F. Krausz, *Long-term stabilization of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses*, Applied Physics B, **79**, 1021 (2004).
- K. Bezuharov, A. Dreischuh, G. G. Paulus, M. G. Schätzel und H. Walther, *Vortices in femtosecond laser fields*, Optics Letters, **29**, 1942 (2004).
- F. Lindner, M. G. Schätzel, G. G. Paulus, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, M. Lezius und F. Krausz, *Spatiotemporal determina-*

tion of the absolute phase of few-cycle laser pulses, Proceedings of the 14th International Conference on Ultrafast Phenomena, Niigata, Japan, Springer Series in Chemical Physics **79**, 94 (2005.)

- F. Lindner, M. G. Schätzel, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, M. Lezius, F. Krausz, D.B. Milošević, D. Bauer, W. Becker und G. G. Paulus, *Attosecond Double-Slit Experiment*, Physical Review Letters, **95**, 040401 (2005).
- A. Dreischuh, K. Bezuharov, G. G. Paulus, M. G. Schätzel, H. Walther, D.N. Neshev, W. Królikowski und Yu. S. Kivshar, *Femtosecond optical vortices*, Bulgarian Journal of Physics, Advances in Physics and Astrophysics of the 21st Century, Sonderausgabe **32** (2005).
- K. Bezuharov, A. Dreischuh, G. G. Paulus, M. G. Schätzel, H. Walther, D. Neshev, W. Królikowski und Yuri Kivshar, *Spatial phase dislocations in femtosecond laser pulses*, Journal of the Optical Society of America B, **23**, 26 (2006).

Abbildungsverzeichnis

1.1. Die historischen ersten Messungen von ATI und NSDI	3
2.1. Ionisationsschemata: Photoeffekt, MPI und ATI	7
2.2. Dritte Stufe des 3-Stufen-Modells: Rückkehr des Elektrons	10
2.3. Ionisationsverhalten einiger Alkaliatome	17
3.1. Das 100 kHz-Femtosekundenlasersystem	25
3.2. Benötigte Kompressorlänge für verschiedene Glassorten der Prismen	27
3.3. Selbstfokussierung infolge eines intensitäts- oder temperaturabhängigen Brechungsindex	33
3.4. Thermische Linse in Saphir bei 17 W und 30 W Pumpleistung als Funktion der Kühlemperatur	34
3.5. CAD-Zeichnung der kryogenen Kühlstufe im Verstärker	36
3.6. Ausgangsleistung als Funktion der Pumpintensität: $P_{\text{aus}}(P_{\text{Pumpe}})$	37
3.7. Ausgangsleistung als Funktion der Temperatur des Ti:Sa-Kristalls: $P_{\text{aus}}(T)$	38
3.8. Selbstphasenmodulation: prinzipieller Verlauf und simuliertes Spektrum	40
3.9. Spektrale Verbreiterung in einer Hohlfaser (Meßdaten)	43
3.10. Prinzip einer Strahlstabilisierung	45
4.1. Versuchsaufbau: COLTRIMS / Reaktionsmikroskop	49
4.2. Impulsverteilung von Ar^{++} und Ne^{++} nach der NSDI bei verschiedenen Laserintensitäten	52
4.3. Impulskorrelation der beiden Photoelektronen nach der NSDI von Ar bei verschiedenen Laserintensitäten	55
4.4. Impulsverteilung von Ar^{++} nach der NSDI bei verschiedenen Laserintensitäten (nur für $p_{\parallel}(e_1) \approx p_{\parallel}(e_2)$)	56
4.5. Kinetische Energie des rückkehrenden Elektrons $E_{\text{kin}}(t_r)$ als Funktion der Zeit und die zugehörige Ionisationsschwelle $I_{\text{p}}^+(t_r)$ bei verschiedenen Laserintensitäten	57
4.6. Impulsverteilung $f(p_{\parallel})$ der Molekül-Dikationen von O_2 und N_2 nach der NSDI für verschiedene Laserintensitäten	59
4.7. Impulskorrelation der beiden Photoelektronen von N_2 nach der NSDI	60
4.8. Impulskorrelation der beiden Photoelektronen von O_2 nach der NSDI bei verschiedenen Laserintensitäten	61
4.9. Impulsverteilung $\bar{f}(p_{\parallel})$ der Molekül-Dikationen von O_2^{++} nach der NSDI, gemäß semiklassischer Berechnungen	63
4.10. Impulskorrelation der beiden Photoelektronen nach der NSDI von N_2 , berechnet mit einem semiklassischen Modell	65

4.11. Impulskorrelation der beiden Photoelektronen nach der NSDI von O ₂ , berechnet nach einem semiklassischen Modell unter Beachtung der Orbitalsymmetrie	66
4.12. Versuchsaufbau: ATI-Elektronenspektrometer in Stereokonfiguration	68
4.13. Termschemata der untersuchten Alkaliatome	71
4.14. ATI-Spektren von Cäsium	72
4.15. Winkelaufgelöste ATI-Spektren von Cäsium	74
4.16. ATI-Spektren von Kalium	75
5.1. \mathcal{E} -Feld eines Wenigzyklenpulses	79
5.2. Frequenzkamm und $f - 2f$ -Methode zur Phasenstabilisierung	80
5.3. Das phasenstabilisierte 5 fs-Lasersystem LWS 0,1	82
5.4. Das Phasenstabilisierungsschema des Lasersystems LWS 0,1	83
5.5. Klassisch berechnete Driftenergie von ATI-Photoelektronen als Funktion der Startzeit t_0	84
5.6. Polardiagramm der beobachteten und berechneten Phaseneffekte bei der ATI (L/R-Darstellung)	85
5.7. Phasenstabilität des LWS 0,1 über 12 Minuten	86
5.8. Gemessenes Fehlersignal für verschiedene Energiefenster als Funktion der absoluten Phase	87
5.9. Stabilisierung der absoluten Phase mit dem Stereo-ATI-Spektrometer	88
5.10. Elektrostatische Repeller	90
5.11. Konvergenzverhalten des Fehlersignals $(L - R)/(L + R)$ bei der Mittelung über mehrer Schüsse	92
5.12. Photo des kompakten sATI-Phasenmeters	93
6.1. Langzeitstabilisierung der absoluten Phase mit dem Stereo-ATI-Phasenmeter	96
6.2. Impulsverteilung des Ar ⁺⁺ -Dikations nach der NSDI für verschiedene Werte der absoluten Phase φ	98
6.3. Numerische Simulation der Impulsverteilung des Summenimpulses nach der NSDI in Wenigzyklenpuls für verschiedene Werte der absoluten Phase φ	99
6.4. Doppelspaltexperimente »damals und heute«	103
6.5. Phasenabhängige ATI-Spektren in Argon	104
6.6. Phasenabhängiger Kontrast der Peaks in den ATI-Spektren für ausgewählte φ	106
6.7. Phasenabhängiger Kontrast der Peaks in den ATI-Spektren in Falschfarbendarstellung	107
6.8. Numerische Lösung der Schrödingergleichung für das Doppelspaltexperiment	108
6.9. Graphische Lösung des Doppelspaltproblems für $p - eA(t_0) = 0$ bei einem Laserpuls mit $\varphi = 3\pi/2$	109

Literaturverzeichnis

- [ABB⁺98] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle und G. Gerber. Control of Chemical Reactions by Feedback-Optimized Phase-Shaped Femtosecond Laser Pulses. *Science*, 282:919, Oktober 1998.
- [ABH⁺97] A. Assion, T. Baumert, J. Helbing, V. Seyfried und G. Gerber. Femtosecond time-resolved observation of above-threshold ionization in Na₂. *Phys. Rev. A*, 55(3):1899–1902, März 1997.
- [ADK87] M. V. Ammosov, N. B. Delone und V. P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *J. Exper. Theor. Phys.*, 64:1191–1194, 1987.
- [ADZS79] I. S. Aleksakhin, N. B. Delone, I. P. Zapesochnyĭ und V. V. Suran. Observation and study of two-electron multiphoton ionization of atoms. *J. Exper. Theor. Phys.*, 49(3):447–451, März 1979.
- [AFM⁺79] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite und N. K. Rahman. Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 42(17):1127–1130, April 1979.
- [Agr89] G. P. Agrawal. *Nonlinear Fiber Optics*. Academic Press, San Diego, London, 1989.
- [AKL⁺87] P. Agostini, J. Kupersztych, L. A. Lompré, G. Petite und F. Yergeau. Direct evidence of ponderomotive effects via laser pulse duration in above-threshold ionization. *Phys. Rev. A*, 36(8):4111–4114, Oktober 1987.
- [ANVA⁺99] M. Armtdt, O. Nairz, J. Vos-Andrea, C. Keller, G. v. d. Zouw und A. Zeilinger. Wave-particle duality of C₆₀ molecules. *Nature*, 401:680–682, Oktober 1999.
- [ATC⁺95] S. Augst, A. Talebpour, S. L. Chin, Y. Beaudoin und M. Chaker. Nonsequential triple ionization of argon atoms in a high-intensity laser field. *Phys. Rev. A*, 52(2):R917–R919, August 1995.
- [Bae86] T. Baer. Large-amplitude fluctuations due to longitudinal mode coupling in diode-pumped intracavity-doubled Nd:YAG lasers. *J. Opt. Soc. Am. B*, 3(9):1175–1180, September 1986.
- [Bau05] D. Bauer. Emergence of Classical Orbits in Few-Cycle Above-Threshold Ionization of Atomic Hydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, 94(11):113001, März 2005.
- [BDP⁺04] K. Bezuharov, A. Dreischuh, G. G. Paulus, M. G. Schätzel und H. Walther. Vortices in femtosecond laser fields. *Opt. Lett.*, 29(16):1942–1944, August 2004.
- [BDP⁺06] K. Bezuharov, A. Dreischuh, G. G. Paulus, M. G. Schätzel, H. Walther, D. Neshev, W. Królikowski und Yu. Kivshar. Spatial phase dislocations in femtosecond laser pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 23(1):26–35, Januar 2006.

- [BGK⁺02] W. Becker, F. Grasbon, R. Kopold, D.B. Milošević und G.G. Paulus. Above-threshold ionization: From classical features to quantum effects. *Adv. At. Mol. Opt. Phys.*, 48:35–98, 2002.
- [BPL⁺05] A. Baltuška, G.G. Paulus, F. Lindner, R. Kienberger und F. Krausz. Generation and measurement of intense phase-controlled few-cycle laser pulses. In Jun Ye und Cundiff Steven T., Hrsg., *Femtosecond optical frequency comb technology*, Seiten 263–313, New York, 2005. Springer.
- [BR99] A. D. Bandrauk und J. Ruel. Charge-resonance-enhanced ionization of molecular ions in intense laser pulses: Geometric and orientation effects. *Phys. Rev. A*, 59(3):2153–2162, März 1999.
- [BRK93] K. Burnett, V. C. Reed und P. L. Knight. Atoms in ultra-intense laser fields. *J. Phys. B*, 26(4):561–598, Februar 1993.
- [BRP⁺04] S.-W. Bahk, P. Rousseau, T. A. Planchon, V. Chvykov, G. Kalintchenko, A. Maksimchuk, G. A. Mourou und V. Yanovsky. Generation and characterization of the highest laser intensities (10^{22} W/cm²). *Opt. Lett.*, 29(24):2837–2839, Dezember 2004.
- [BRVC01] V. R. Bhardwaj, D. M. Rayner, D. M. Villeneuve und P. B. Corkum. Quantum Interference in Double Ionization and Fragmentation of C₆H₆ in Intense Laser Fields. *Phys. Rev. Lett.*, 87(25):253003, Dezember 2001.
- [BSG99] T. Brixner, M. Strehle und G. Gerber. Feedback-controlled optimization of amplified femtosecond laser pulses. *Appl. Phys. B*, 68(2):281–284, Februar 1999.
- [BUG⁺03] A. Baltuška, M. Uiberacker, E. Goulielmakis, R. Kienberger, V. F. Yakovlev, Th. Udem, T. W. Hänsch und F. Krausz. Phase-Controlled Amplification of Few-Cycle Laser Pulses. *IEEE J. Quantum Electron.*, 9(4):972–989, August 2003.
- [BUU⁺03] A. Baltuška, Th. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, Ch. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch und F. Krausz. Attosecond control of electronic processes by intense light fields. *Nature*, 421:611–615, Februar 2003.
- [CBB89] P. B. Corkum, N. H. Burnett und F. Brunel. Above-threshold ionization in the long-wavelength limit. *Phys. Rev. Lett.*, 62(11):1259–1262, März 1989.
- [CBM⁺98] J.-C. Chanteloup, H. Baldis, A. Migus, G. Mourou, B. Loiseaux und J.-P. Hui-gnard. Nearly diffraction-limited laser focal spot obtained by use of an optically addressed light valve in an adaptive-optics loop. *Opt. Lett.*, 23(6):475–477, März 1998.
- [CH98] C. Cornaggia und Ph. Hering. Laser-induced non-sequential double ionization of small molecules. *J. Phys. B*, 31(11):L503–L510, April 1998.
- [CH00] C. Cornaggia und Ph. Hering. Nonsequential double ionization of small molecules induced by a femtosecond laser field. *Phys. Rev. A*, 62(2):023403, August 2000.
- [CMK97] I. P. Christov, M. M. Murnane und H. C. Kapteyn. High-Harmonic Generation of Attosecond Pulses in the “Single-Cycle” Regime. *Phys. Rev. Lett.*, 78(7):1251–1254, Februar 1997.
- [Cor93] P. B. Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71(13):1994–1997, September 1993.

- [CTR77a] C. Cohen-Tannoudji und S. Reynaud. Dressed-atom description of resonance fluorescence and absorption spectra of a multi-level atom in an intense laser beam. *J. Phys. B*, 10(3):345–363, Februar 1977.
- [CTR77b] C. Cohen-Tannoudji und S. Reynaud. Modification of resonance Raman scattering in very intense laser fields. *J. Phys. B*, 10(3):365–383, Februar 1977.
- [DAL⁺04] P. Dombi, A. Apolonski, Ch. Lemell, G. G. Paulus, M. Kakehata, R. Holzwarth, Th. Udem, K. Torizuka, J. Burgdörfer, T. W. Hänsch und F. Krausz. Direct measurement and analysis of the carrier-envelope phase in light pulses approaching the single-cycle regime. *New J. Phys.*, 6:39, März 2004.
- [dB23] L. de Broglie. Waves and Quanta. *Nature*, 112:540, 1923.
- [dB24] Louis-Victor Pierre Raymond de Broglie. *Recherches sur la théorie des Quanta*. Dissertation, Sorbonne, Paris, November 1924.
- [DG27] C. J. Davisson und L. H. Germer. The scattering of electrons by a single crystal of nickel. *Nature*, 119:558–560, 1927.
- [DHK⁺01] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, Ch. Spielmann, G. A. Reider, P. B. Corkum und F. Krausz. X-ray Pulses Approaching the Attosecond Frontier. *Science*, 291:1923–1927, März 2001.
- [DK91] N. B. Delone und V. P. Krainov. Energy and angular electron spectra for the tunnel ionization of atoms by strong low-frequency radiation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 8(6):1207–1211, Juni 1991.
- [DK94] N. B. Delone und V. P. Krainov. *Multiphoton processes in atoms*. Springer-Verlag, Berlin, 1994.
- [DMJ⁺00] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer und H. Schmidt-Böcking. COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: A ‘Momentum Microscope’ to view Atomic Collision Dynamics. *Phys. Rep.*, 330:95–192, 2000.
- [DP93] A. C. DeFranzo und B. G. Pazol. Index of refraction measurements on sapphire at low temperatures and visible wavelengths. *Appl. Opt.*, 32(13):2224–2234, Mai 1993.
- [DPL00] M. J. DeWitt, B. S. Prall und R. J. Levis. Orientational averaging in the intense field tunnel ionization of molecules. *J. Chem. Phys.*, 113(4):1553–1558, Juli 2000.
- [DR96] J.-C. Diels und W. Rudolph. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena: Fundamentals, Techniques and Applications on a Femtosecond Time Scale*. Academic Press, 1996.
- [EDM⁺00] U. Eichmann, M. Dörr, H. Maeda, W. Becker und W. Sandner. Collective Multielectron Tunneling Ionization in Strong Fields. *Phys. Rev. Lett.*, 84(16):3550–3553, April 2000.
- [Ein05] A. Einstein. Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt. *Ann. Phys.*, 17:132–148, März 1905.
- [ELR⁺03] E. Eremina, X. Liu, H. Rottke, W. Sandner, A. Dreischuh, F. Lindner, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Moshhammer, B. Feuerstein und J. Ullrich. Laser-induced non-sequential double ionization investigated at and below the threshold for electron impact ionization. *J. Phys. B*, 36:3269–3280, Juli 2003.

- [ELR⁺04] E. Eremina, X. Liu, H. Rottke, W. Sandner, M. G. Schätzel, A. Dreischuh, G. G. Paulus, H. Walther, R. Moshhammer und J. Ullrich. Influence of Molecular Structure on Double Ionization of N_2 and O_2 by High Intensity Ultrashort Laser Pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 92(17):173001, April 2004.
- [Ere05] E. Eremina. *Electron correlation in multiple ionization of atoms and molecules by intense ultra-short laser pulses*. Dissertation, Technische Universität Berlin, Berlin, September 2005.
- [FBCK92] D. N. Fittinghoff, P. R. Bolton, B. Chang und K. C. Kulander. Observation of nonsequential double ionization of helium with optical tunneling. *Phys. Rev. Lett.*, 69(18):2642–2645, November 1992.
- [FBCK94] D. N. Fittinghoff, P. R. Bolton, B. Chang und K. C. Kulander. Polarization dependence of tunneling ionization of helium and neon by 120-fs pulses at 614 nm. *Phys. Rev. A*, 49(3):2174–2177, März 1994.
- [FBM⁺87] R. R. Freeman, P. H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher und M. E. Geusic. Above-threshold ionization with subpicosecond laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 59(10):1092–1095, September 1987.
- [FHPW61] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters und G. Weinreich. Generation of Optical Harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 7(4):118–119, 1961.
- [FHSS00] T. Feurer, M. Hacker, B. Schmidt und G. Stobrawa. Lab 2: Das virtuelle fs-Laserlabor. <http://www.lab2.de>, 2000. Software ist frei verfügbar, benötigt jedoch mindestens LabView 5.1.
- [FLBS04] C. Figueira de Morisson Faria, X. Liu, W. Becker und H. Schomerus. Coulomb repulsion and quantum-classical correspondence in laser-induced nonsequential double ionization. *Phys. Rev. A*, 69(2):021402(R), Februar 2004.
- [FLL⁺88] M. Ferray, A. L’Huillier, X. F. Li, L. A. Lompré, G. Mainfray und C. Manus. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *J. Phys. B*, 21(3):L31–L35, Februar 1988.
- [FMF⁺01] B. Feuerstein, R. Moshhammer, D. Fischer, A. Dorn, C. D. Schröter, J. Deipenwisch, J. R. Crespo López-Urrutia, C. Höhr, P. Neumayer, J. Ullrich, H. Rottke, C. Trump, M. Wittmann, G. Korn und W. Sandner. Separation of Recollision Mechanisms in Nonsequential Strong Field Double Ionization of Ar: The Role of Excitation Tunneling. *Phys. Rev. Lett.*, 87(4):043003, Juli 2001.
- [FMG84] R. L. Fork, O. E. Martinez und J. P. Gordon. Negative dispersion using pairs of prisms. *Opt. Lett.*, 9:150–152, 1984.
- [FN63] L. M. Frantz und J. S. Nodvik. Theory of Pulse Propagation in a Laser Amplifier. *J. Appl. Phys.*, 34(8):2346–2349, August 1963.
- [FPAC82] F. Fabre, G. Petite, P. Agostini und M. Clement. Multiphoton above-threshold ionisation of Xenon at 0.53 and 1.06 μ m. *J. Phys. B*, 15(9):1353–1369, Mai 1982.
- [FSLB04] C. Figueira de Morisson Faria, H. Schomerus, X. Liu und W. Becker. Electron-electron dynamics in laser-induced nonsequential double ionization. *Phys. Rev. A*, 69(4):043405, April 2004.
- [GG01] C. Guo und G. N. Gibson. Ellipticity effects on single and double ionization of diatomic molecules in strong laser fields. *Phys. Rev. A*, 63(4):40701, April 2001.

- [GLNG98] C. Guo, M. Li, J. P. Nibarger und G. N. Gibson. Single and double ionization of diatomic molecules in strong laser fields. *Phys. Rev. A*, 58(6):R4271–R4274, Dezember 1998.
- [GM31] M. Göppert-Mayer. Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen. *Ann. Phys.*, 9:273–294, 1931.
- [GMM⁺77] M. G. Grozeva, D. I. Metchkov, V. M. Mitev, L. I. Pavlov und K. V. Stamenov. Direct ninth harmonic conversion of picosecond laser pulses. *Opt. Comm.*, 23(1):77–79, Oktober 1977.
- [Gou90] L. G. Gouy. Sur une propriété nouvelle des ondes lumineuses. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 110:1251, 1890.
- [Gou05] E. Goulielmakis. *Complete Characterization of Light Waves using Attosecond Pulses*. Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität, München, Juli 2005.
- [GPC⁺01] F. Grasbon, G. G. Paulus, S. L. Chin, H. Walther, J. Muth-Böhm, A. Becker und F. H. M. Faisal. Signatures of symmetry-induced quantum-interference effects observed in above-threshold-ionization spectra of molecules. *Phys. Rev. A*, 63(4):41402R, April 2001.
- [GPKB01] S. P. Goreslavskii, S. V. Popruzhenko, R. Kopold und W. Becker. Electron-electron correlation in laser-induced nonsequential double ionization. *Phys. Rev. A*, 64(5):053402, Mai 2001.
- [GPW⁺03] F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, P. Villoresi, G. Sansone, S. Stagira, M. Nisoli und S. De Silvestri. Above-Threshold Ionization at the Few-Cycle Limit. *Phys. Rev. Lett.*, 91(17):173003, Oktober 2003.
- [GSK⁺00] M. B. Gaarde, K. J. Schafer, K. C. Kulander, B. Sheehy, D. Kim und L. F. DiMauro. Strong species dependence of high order photoelectron production in alkali metal atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 84(13):2822–2825, März 2000.
- [Har28] D. R. Hartree. The Wave Mechanics of an Atom with an Non-Coulomb Central Field. Part I. Theory and Methods. *Proc. Cambridge Phil. Soc.*, 24(111):89–110, 1928.
- [HRB65] J. L. Hall, E. J. Robinson und L. M. Branscomb. Laser Double-Quantum Photodetachment of I^- . *Phys. Rev. Lett.*, 14(25):1013–1017, Juni 1965.
- [HUH⁺00] R. Holzwarth, Th. Udem, T. W. Hänsch, J. C. Knight, W. J. Wadsworth und P. St. J. Russell. Optical Frequency Synthesizer for Precision Spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 85(11):2264–2267, September 2000.
- [HVCR00] A. M. Hankin, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum und D. M. Rayner. Nonlinear Ionization of Organic Molecules in High Intensity Laser Fields. *Phys. Rev. Lett.*, 84(22):5082–5085, Mai 2000.
- [JDR⁺00] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall und S. T. Cundiff. Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis. *Science*, 288:635–639, April 2000.
- [Jön61] C. Jönsson. Elektroneninterferenzen an mehreren künstlich hergestellten Feinspalten. *Zeitschr. Phys.*, 161:454–474, 1961.
- [KA74] P. V. Kaiser und H. W. Astle. Low-loss single-material fibers made from pure fused silica. *Bell Syst. Tech. J.*, 53:1021–1039, 1974.

- [Kas97] A. Kasper. *Erzeugung und Charakterisierung ultrakurzer Lichtpulse aus Titan:Saphir Laser-Oszillatoren*. Dissertation, Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Juni 1997.
- [KBRA96] J. C. Knight, T. A. Birks, P. St. J. Russell und D. M. Atkin. All-silica single-mode optical fiber with photonic crystal cladding. *Opt. Lett.*, 21(19):1547–1549, Oktober 1996.
- [KBR500] R. Kopold, W. Becker, H. Rottke und W. Sandner. Routes to Nonsequential Double Ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 85(18):3781–3784, Oktober 2000.
- [Kel65] L. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *J. Exper. Theor. Phys.*, 20:1307–1314, 1965.
- [KGU⁺04] R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker, A. Baltuška, V. Yakovlev, F. Bammer, A. Scrinzi, Th Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher und F. Krausz. Atomic transient recorder. *Nature*, 427:817–821, Februar 2004.
- [KKL⁺96] W. Kautek, J. Krüger, M. Lenzner, S. Sartania, Ch. Spielmann und F. Krausz. Laser ablation of dielectrics with pulse durations between 20 fs and 3 ps. *Appl. Phys. Lett.*, 69(21):3146–3148, November 1996.
- [KKV81] P. Kruit, J. Kimman und M. J. Van der Wiel. Absorption of additional photons in the multiphoton ionisation continuum of xenon at 1064, 532 and 440 nm. *J. Phys. B*, 14(19):L597–L602, Oktober 1981.
- [KKV83] P. Kruit, J. Kimman und M. J. Van der Wiel. Electron spectra from multiphoton ionization of xenon at 1064, 532, 355 nm. *Phys. Rev. A*, 28(1):248–255, Juli 1983.
- [Koe88] Walter Koechner. *Solid-State Laser Engineering*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York London Paris Tokyo, second edition. Auflage, 1988. Kapitel 4.3: B-Integral.
- [KSK92] J. L. Krause, K. J. Schafer und K. C. Kulander. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Phys. Rev. Lett.*, 68(24):3535–3538, Juni 1992.
- [KTK⁺01] M. Kakehata, H. Takada, Y. Kobayashi, K. Torizuka, Y. Fujihira, T. Homma und H. Takahashi. Single-shot measurement of carrier-envelope phase changes by spectral interferometry. *Opt. Lett.*, 26(18):1436–1438, September 2001.
- [Kuc87] M. Yu. Kuchiev. Atomic antenna. *J. Exper. Theor. Phys.*, 45(7):404–406, April 1987.
- [LB93] A. L’Huillier und Ph. Balcou. High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser. *Phys. Rev. Lett.*, 70(6):774–777, Februar 1993.
- [LBI⁺94] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L’Huillier und P. B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev. A*, 49(3):2117–2132, März 1994.
- [LF04] X. Liu und C. Figueira de Morisson Faria. Nonsequential Double Ionization with Few-Cycle Laser Pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 92(13):133006, April 2004.
- [LGJ⁺87] T. S. Luk, T. Graber, H. Jara, U. Johann, K. Boyer und C. K. Rhodes. Subpicosecond ultraviolet multiphoton electron spectroscopy of rare gases. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4(5):847–852, Mai 1987.

- [Lin04] F. Lindner. *Atoms in intense ultrashort laser pulses and the absolute phase*. Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität, München, Juni 2004.
- [LKKK00] M. Lenzner, F. Krausz, J. Krüger und W. Kautek. Photoablation with sub-10 fs laser pulses. *Appl. Surf. Sci.*, 154-155:11–16, 2000.
- [LL65] L. D. Landau und E. M. Lifshitz. *Quantum Mechanics: Non-Relativistic Theory*, Jgg. 3. Pergamon, New York, 1965.
- [LLF⁺89] X. F. Li, A. L’Huillier, M. Ferray, L. A. Lompré und G. Mainfray. Multiple-harmonic generation in rare gases at high laser intensity. *Phys. Rev. A*, 39(11):5751–5761, Juni 1989.
- [LLMM83] A. L’Huillier, L. A. Lompré, G. Mainfray und C. Manus. Multiply charged ions induced by multiphoton absorption in rare gases 0.53 μm . *Phys. Rev. A*, 27(5):2503–2512, Mai 1983.
- [LLMM85] L. A. Lompre, A. L’Huillier, G. Mainfray und C. Manus. Laser-intensity effects in the energy distributions of electrons produced in multiphoton ionization of rare gases. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2(12):1906, Dezember 1985.
- [LLP85] H. J. Lehmeier, W. Leupacher und A. Penzkofer. Nonresonant third order hyperpolarizability of rare Gases and N_2 determined by third harmonic generation. *Opt. Comm.*, 56(1):67–72, November 1985.
- [LPG⁺02] F. Lindner, G. G. Paulus, F. Grasbon, A. Dreischuh und H. Walther. Dispersion Control in a 100-kHz-Repetition-Rate 35-fs Ti : Sapphire Regenerative Amplifier System. *IEEE J. Quantum Electron.*, 38(11):1465–1470, November 2002.
- [LPW⁺04] F. Lindner, G. G. Paulus, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, M. Lezius und F. Krausz. The Gouy effect for few-cycle laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 92(11):113001, März 2004.
- [LRE⁺04] X. Liu, H. Rottke, E. Eremina, W. Sandner, E. Goulielmakis, K. O’Keeffe, M. Lezius, F. Krausz, F. Lindner, M. G. Schätzel, G. G. Paulus und H. Walther. Nonsequential Double Ionization at the Single-Optical-Cycle Limit. *Phys. Rev. Lett.*, 93:263001, Dezember 2004.
- [LSL95] M. Lewenstein, P. Salières und A. L’Huillier. Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 52(6):4747–4754, Dezember 1995.
- [LSS⁺03] F. Lindner, W. Stremme, M. G. Schätzel, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Hartmann und L. Strüder. High-order harmonic generation at a repetition rate of 100 kHz. *Phys. Rev. A*, 68(1):013814, Juli 2003.
- [LSW⁺05] F. Lindner, M. G. Schätzel, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, F. Krausz, D. B. Milošević, D. Bauer, W. Becker und G. G. Paulus. Attosecond Double-Slit Experiment. *Phys. Rev. Lett.*, 95(4):040401, Juli 2005.
- [LTC98] S. Larochelle, A. Talebpour und S. L. Chin. Non-sequential multiple ionization of rare gas atoms in a Ti:Sapphire laser field. *J. Phys. B*, 31(6):1201–1214, März 1998.
- [Mai60] T.H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187:493, 1960.
- [MBBCF01] J. Muth-Böhm, Becker, S. L. Chin und F. H. M. Faisal. *S*-matrix theory of ionisation of polyatomic molecules in an intense laser pulse. *Chem. Phys. Lett.*, 337(4):313–318, April 2001.

- [MBBF00] J. Muth-Böhm, A. Becker und F. H. M. Faisal. Suppressed Molecular Ionization for a Class of Diatomics in Intense Femtosecond Laser Fields. *Phys. Rev. Lett.*, 85(11):2280, September 2000.
- [MFS⁺00] R. Moshhammer, B. Feuerstein, W. Schmitt, A. Dorn, C. D. Schröter, J. Ullrich, H. Rottke, C. Trump, M. Wittmann, G. Korn, K. Hoffmann und W. Sandner. Momentum Distributions of Neⁿ⁺ Ions Created by an Intense Ultrashort Laser Pulse. *Phys. Rev. Lett.*, 84(3):447–450, Januar 2000.
- [MGJ⁺87] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer und C. K. Rhodes. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4(4):595, April 1987.
- [MM91] G. Mainfray und C. Manus. Multiphoton ionization of atoms. *Rep. Prog. Phys.*, 54(10):1333–1372, Oktober 1991.
- [MMP76] P. G. Merli, G. F. Missiroli und G. Pozzi. On the statistical aspects of electron interference phenomena. *Am. J. Phys.*, 44(3):306–307, März 1976. Dieses Paper kommentiert die Ergebnisse aus *Am. J. Phys.* 41:639, 1973.
- [MPB03] D. B. Milošević, G. G. Paulus und W. Becker. High-order above-threshold ionization with few-cycle pulse: a meter of the absolute phase. *Opt. Expr.*, 11(12):1418–1429, Juni 2003.
- [MS64] E. A. J. Marcatili und R. A. Schmeltzer. Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers. *Bell Syst. Tech. J.*, 43:1783–1809, Juni 1964.
- [MUS⁺96] R. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, J. Ullrich und H. Schmidt-Böcking. A 4 π recoil-ion electron momentum analyzer: A high-resolution ‘microscope’ for the investigation of the dynamics of atomic, molecular and nuclear reactions. *Nucl. Instrum. Meth. B*, 108(4):425–445, März 1996.
- [NDS96] M. Nisoli, S. De Silvestri und O. Svelto. Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique. *Appl. Phys. Lett.*, 68(20):2793–2795, Mai 1996.
- [Nic92] W. Nicklich. *Aufbau und Test einer Anlage zur Erzeugung von ultrakurzen Laserpulsen hoher Intensität. Multiphotonionisation von Cäsium und Lithium mit intensiven Femtosekundenpulsen.* Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München, September 1992.
- [NKW⁺92] W. Nicklich, H. Kumpfmüller, H. Walther, X. Tang, H. Xu und P. Lambropoulos. Above-threshold ionization of Cesium under femtosecond laser pulses: New substructure due to strongly coupled bound states. *Phys. Rev. Lett.*, 69(24):3455–3458, Dezember 1992.
- [NLH⁺02] H. Niikura, F. Légaré, R. Hasbani, A. D. Bandrauk, M. Yu. Ivanov, D. M. Villeneuve und P. B. Corkum. Sub-laser-cycle electron pulses for probing molecular dynamics. *Nature*, 417:917–922, Juni 2002.
- [Nor92] T. B. Norris. Femtosecond pulse amplification at 250 kHz with a Ti:sapphire regenerative amplifier and application to continuum generation. *Opt. Lett.*, 17:1009–1011, 1992.
- [NPS⁺02] M. Nisoli, E. Priori, G. Sansone, S. Stagira, G. Cerullo, S. De Silvestri, C. Attucci, R. Bruzzese, C. de Lisio, P. Villoresi, L. Poletto, M. Pascolini und G. Tonello. High-Brightness High-Order Harmonic Generation by Truncated Bessel Beams in the Sub-10-fs Regime. *Phys. Rev. Lett.*, 88(3):33902, Januar 2002.

- [NSD⁺97] M. Nisoli, S. Stagira, S. De Silvestri, O. Svelto, S. Sartania, Z. Cheng, M. Lenzner, Ch. Spielmann und F. Krausz. A novel high-energy pulse compression system: generation of multigigawatt sub-5-fs pulses. *Appl. Phys. B*, 65(2):189–196, August 1997.
- [NSS⁺03] M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, S. De Silvestri, C. Vozzi, M. Pascolini, L. Polletto, P. Villoresi und G. Tondello. Effects of Carrier-Envelope Phase Differences of Few-Optical-Cycle Light Pulses in Single-Shot High-Order-Harmonic Spectra. *Phys. Rev. Lett.*, 91(21):213905, November 2003.
- [PBNW94] G. G. Paulus, W. Becker, W. Nicklich und H. Walther. Rescattering effects in above-threshold ionization: a classical model. *J. Phys. B*, 27(21):L703–L708, November 1994.
- [PFA⁺84] G. Petite, F. Fabre, P. Agostini, M. Crance und M. Aymar. Nonresonant multiphoton ionization of cesium in strong fields: Angular distributions and above-threshold ionization. *Phys. Rev. A*, 29(5):2677–2689, Mai 1984.
- [PGW⁺00] G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther, R. Kopold und W. Becker. Above-Threshold Ionization by an Elliptically Polarized Field: Interplay between Electronic Quantum Trajectories. *Phys. Rev. Lett.*, 84(17):3791–3794, April 2000.
- [PGW⁺01] G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther, P. Villoresi, M. Nisoli, S. Stagira, E. Priori und S. De Silvestri. Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses. *Nature*, 414:182–184, November 2001.
- [PHA⁺01] A. Poppe, R. Holzwarth, A. Apolonski, G. Tempea, Ch. Spielmann, T. W. Hänsch und F. Krausz. Few-cycle optical waveform synthesis. *Appl. Phys. B*, 72(3):373–376, Februar 2001.
- [PLW⁺03] G. G. Paulus, F. Lindner, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, M. Lezius und F. Krausz. Measurement of the Phase of Few-Cycle Laser Pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 91(25):253004, Dezember 2003.
- [PNX⁺94] G. G. Paulus, W. Nicklich, H. Xu, P. Lambropoulos und H. Walther. Plateau in above threshold ionization spectra. *Phys. Rev. Lett.*, 18(2):2851–2854, Mai 1994.
- [PTB⁺01] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Berger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, G. H. Müller und P. Agostini. Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation. *Science*, 292(5522):1689–1692, Juni 2001.
- [PW92] B. Proctor und F. Wise. Quartz prism sequence for reduction of cubic phase in a mode-locked Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.*, 17:1295–1297, 1992.
- [Rab37] I. I. Rabi. Space Quantization in a Gyration Magnetic Field. *Phys. Rev.*, 51(8):652–654, April 1937.
- [RC88] C. Rolland und P. B. Corkum. Compression of high-power optical pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 5(3):641–647, März 1988.
- [Rei92] H. R. Reiss. Theoretical methods in quantum optics: S-matrix and Keldysh techniques for strong-field processes. *Prog. Quant. Electron.*, 16(1):1–71, Januar 1992.
- [RHUH99] J. Reichert, R. Holzwarth, Th. Udem und T. W. Hänsch. Measuring the frequency of light with mode-locked lasers. *Opt. Comm.*, 172(1-6):59–68, Dezember 1999.

- [Rou99] C.B. Roundy. Current Technology of Laser Beam Profile Measurements, 1999. Zu beziehen unter <http://www.spiricon.com/tutorial.html> oder <http://aries.ucsd.edu/LMI/tutorials>.
- [RS85] A. A. Radzig und B.M. Smirnov. *Reference Data on Atoms, Molecules and Ions*, Jgg. 31 of *Springer Series in Chem. Phys.* Springer, Berlin, 1985.
- [RSE78] J. Reintjes, C.-Y. She und R. Eckardt. Generation of coherent radiation in XUV by fifth- and seventh-order frequency conversion in rare gases. *IEEE J. Quantum Electron.*, 14(8):581–596, August 1978.
- [Rul98] C. Rullière, Hrsg. *Femtosecond Laser Pulses: Principles and Experiments*. Springer, Berlin, Heidelberg, 1998.
- [SBK⁺03] B. Schenkel, J. Biegert, U. Keller, C. Vozzi, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, S. De Silvestri und O. Svelto. Generation of 3.8-fs pulses from adaptive compression of a cascaded hollow fiber supercontinuum. *Opt. Lett.*, 28(20):1987–1989, 2003.
- [SCL⁺97] S. Sartania, Z. Cheng, M. Lenzner, G. Tempea, Ch. Spielmann, F. Krausz und K. Ferencz. Generation of 0.1-TW 5-fs optical pulses at a 1-kHz repetition rate. *Opt. Lett.*, 22(20):1562–1564, Oktober 1997.
- [SE01] K. Sacha und B. Eckhardt. Pathways to double ionization of atoms in strong fields. *Phys. Rev. A*, 63(4):043414, April 2001.
- [SFH⁺96] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore und M. D. Perry. Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics. *Phys. Rev. B*, 53(4):1749–1761, Januar 1996.
- [SFSK94] R. Szipocs, K. Ferencz, C. Spielmann und F. Krausz. Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers. *Opt. Lett.*, 19:201–203, 1994.
- [She84] Y.R. Shen. *The Principles of Nonlinear Optics*. Wiley & Sons, New York, 1984.
- [SK98] M.B. Smirnov und V.P. Krainov. Ionization of a molecular hydrogen ion by a strong low-frequency electromagnetic field of laser radiation. *J. Exper. Theor. Phys.*, 86(2):323–327, Februar 1998.
- [SKS91] D.E. Spence, P.N. Kean und W. Sibbett. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.*, 16(1):42–44, Januar 1991.
- [SLP⁺04] M. G. Schätzel, F. Lindner, G. G. Paulus, H. Walther, E. Goulielmakis, A. Baltuška, M. Lezius und F. Krausz. Long-term stabilization of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses. *Appl. Phys. B*, 79(8):1021–1025, Dezember 2004.
- [SLW⁺98] B. Sheehy, R. Lafon, M. Widmer, B. Walker, L. F. DiMauro, P. Agostini und K. C. Kulander. Single- and multiple-electron dynamics in the strong-field tunneling limit. *Phys. Rev. A*, 58(5):3942–3952, November 1998.
- [SLWL⁺03] H. Sakai, J. J. Larsen, I. Wendt-Larsen, J. Olesen, P. B. Corkum und H. Stapelfeldt. Nonsequential double ionization of D₂ molecules with intense 20-fs pulses. *Phys. Rev. A*, 67(6):063404, Juni 2003.
- [SM85] D. Strickland und G. Mourou. Compression of amplified and chirped optical pulses. *Opt. Comm.*, 56(3):219–221, Februar 1985.
- [SM88] G. Scoles und D.R. Miller. *Atomic and Molecular Beam Methods, Vol. 1*, Kapitel 2: Free Jet Sources, Seiten 14–53. Oxford University Press, New York, 1988.

- [SML⁺99] B. Sheehy, J.D.D. Martin, DiMauro L.F., P. Agostini, K.J. Schafer, M.B. Gaarde und K.C. Kulander. High harmonic generation at long wavelengths. *Phys. Rev. Lett.*, 83(25):5270–5273, Dezember 1999.
- [ST58] A.L. Schawlow und C.H. Townes. Infrared and Optical Masers. *Phys. Rev.*, 112(6):1940–1949, 1958.
- [Ste03] D.A. Steck. Sodium, Cesium, Rubidium 87: D Line Data. <http://steck.us/alkalidata>, Oktober 2003. (revision 1.6).
- [Sve98] O. Svelto. *Principles of Lasers*. Penum Press, New York, London, 1998.
- [SYDK93] K.J. Schafer, B. Yang, L.F. DiMauro und K.C. Kulander. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Phys. Rev. Lett.*, 70(15):1599–1602, März 1993.
- [TB98] G. Tempea und T. Brabec. Nonlinearsource for the generation of high-energy few-cycle optical pulses. *Opt. Lett.*, 23:1286–1288, August 1998.
- [TCC96] A. Talebpoury, C.-Y. Chien und S.L. Chin. The effects of dissociative ionization of O₂. *J. Phys. B*, 29(18):L677–L680, September 1996.
- [TEM⁺89] A. Tonomura, J. Endo, T. Matsuda, T. Kawasaki und H. Ezawa. Demonstration of single-electron buildup of an interference pattern. *Am. J. Phys.*, 57(2):117–120, Februar 1989.
- [TLC97] A. Talebpour, S. Larochelle und S.L. Chin. Non-sequential and sequential double ionization of NO in an intense femtosecond Ti:sapphire laser pulse. *J. Phys. B*, 30(7):L245–L250, April 1997.
- [TMW03] T. Tritschler, O.D. Mücke und M. Wegener. Extreme nonlinear optics of two-level systems. *Phys. Rev. A*, 68(3):033404, September 2003.
- [TR27] G.P. Thomson und A. Reid. Diffraction of Cathode Rays by a Thin Film. *Nature*, 119:890–895, 1927.
- [TSD⁺99] H.R. Telle, G. Steinmeyer, A.E. Dunlop, J. Stenger, D.H. Sutter und U Keller. Carrier-envelope offset phase control: A novel concept for absolute optical frequency measurement and ultrashort pulse generation. *Appl. Phys. B*, 69(4):327–332, Oktober 1999.
- [TSJ85] W.J. Tomlinson, R.H. Stolen und A.M. Johnson. Optical wave breaking of pulses in nonlinear optical fibers. *Opt. Lett.*, 10(9):457–459, September 1985.
- [UHD⁺88] J. Ullrich, M. Horbatsch, V. Dangendorf, S. Kelbch und H. Schmidt-Böcking. Scattering-angle-dependent multiple ionisation cross sections in high-energy heavy-ion-atom collisions. *J. Phys. B*, 21(4):611–624, Februar 1988.
- [USB87] J. Ullrich und Schmidt-Böcking. Time-of-flight spectrometer for the determination of microradian projectile scattering angles in atomic collisions. *Phys. Lett. A*, 125(4):193–196, November 1987.
- [VD65] G.S. Voronov und N.B. Delone. Ionization of the Xenon Atom by the Electric Field of Ruby Laser Emission. *J. Exper. Theor. Phys.*, 1(1):66–68, 1965.
- [vHB00] H.W. v. d. Hart und K. Burnett. Recollision model for double ionization of atoms in strong laser fields. *Phys. Rev. A*, 62(1):013407, Juli 2000.
- [vLM88] H.B. v. Linden v. d. Heuvell und H.G. Muller. Limiting cases of excess-photon ionization. In S.J. Smith und P.L. Knight, Hrsg., *Multiphoton Processes*, Jgg. 8 of *Studies in Modern Optics*, Seiten 25–34, Oxford, Mai 1988. Cambridge University Press.

- [Vol35] D. M. Volkov. Über eine Klasse von Lösungen der Diracschen Gleichung. *Zeitschr. Phys.*, 94(3-4):250–260, 1935.
- [vTM95] N. J. v. Druten, R. Trainham und H. G. Muller. Above-threshold ionization of cesium by 1.9 μm light. *Phys. Rev. Lett.*, 51(2):4, Februar 1995.
- [WAL⁺02] M. Wollenhaupt, A. Assion, D. Liese, Ch. Sarpe-Tudoran, T. Baumert, S. Zamith, M. A. Bouchene, B. Girard, A. Flettner, U. Weichmann und G. Gerber. Interferences of Ultrashort Free Electron Wave Packets. *Phys. Rev. Lett.*, 89(17):173001, Oktober 2002.
- [WB86] R. W. Wetmore und R. K. Boyd. Theoretical investigation of the dication of molecular nitrogen. *J. Phys. Chem.*, 90(22):5540–5551, 1986.
- [Wei95] A. M. Weiner. Femtosecond optical pulse shaping and processing. *Prog. Quant. Electron.*, 19:161–237, 1995.
- [Wei00] A. M. Weiner. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators. *Rev. Sci. Instrum.*, 71:1929–1960, 2000.
- [WGP⁺04] N. L. Wagner, E. A. Gibson, T. Popmintchev, I. P. Christov, M. M. Murnane und H. C. Kapteyn. Self-Compression of Ultrashort Pulses through Ionization-Induced Spatiotemporal Reshaping. *Phys. Rev. Lett.*, 93(17):173902, Oktober 2004.
- [WGW⁺00] Th. Weber, H. Giessen, M. Weckenbrock, G. Urbasch, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, M. Vollmer und R. Dörner. Correlated electron emission in multiphoton double ionization. *Nature*, 405:658–661, Juni 2000.
- [WMY⁺93] B. Walker, E. Mevel, B. Yang, P. Breger, J. P. Chambaret, A. Antonetti, L. F. DiMauro und P. Agostini. Double ionization in the perturbative and tunneling regimes. *Phys. Rev. A*, 48(2):R894–R897, August 1993.
- [WN69] J. F. Ward und G. H. C. New. Optical Third Harmonic Generation in Gases by a Focused Laser Beam. *Phys. Rev.*, 185(1):41–47, Juli 1969.
- [WSD⁺94] B. Walker, B. Sheehy, L. F. DiMauro, P. Agostini, K. J. Schafer und K. C. Kulander. Precision Measurement of Strong Field Double Ionization of Helium. *Phys. Rev. Lett.*, 73(9):1227–1230, August 1994.
- [WZHE04] S. Witte, R. T. Zinkstok, W. Hogervorst und K. S. E. Eikema. Control and precise measurement of carrier-envelope phase dynamics. *Appl. Phys. B*, 78(1):5–12, Januar 2004.
- [XSP⁺96] L. Xu, Ch. Spielmann, A. Poppe, T. Brabec, F. Krausz und T. W. Hänsch. Route to phase control of ultrashort light pulses. *Opt. Lett.*, 21(24):2008–2010, Dezember 1996.
- [YI01] G. L. Yudin und M. Yu. Ivanov. Nonadiabatic tunnel ionization: looking inside a laser cycle. *Phys. Rev. A*, 64(1):013409, Juli 2001.
- [ZHPM00] D. Zeidler, T. Hornung, D. Proch und M. Motzkus. Adaptive compression of tunable pulses from a noncollinear-type OPA to below 16 fs by feedback-controlled pulse shaping. *Appl. Phys. B*, 70:S125–S131, Juni 2000.

Sachregister

- Above-Threshold Ionisation, 2, 3, 6, 14, 72, 75, 85, 95
Absorption, 2, 33, 83
Achromat, *siehe* Linse, achromatische
Acqiris, 93
Acrylat, 42
ADK, *siehe* Ammosov-Delone-Krainov
Airy-Scheibe, 41
Algorithmus, 94
 evolutionärer, 28, 43
Alkalimetalle, 16, 66, 71
Ammosov, M., 10
Ammosov-Delone-Krainov, 10, 17, 18, 64, 100
Amplified Spontaneous Emission, 26
Anode, ortsempfindliche, 50
AOM, *siehe* Modulator, akustooptischer
Argon, 51, 54, 55, 68
ASE, *siehe* Amplified Spontaneous Emission
ATI, *siehe* Above-Threshold Ionisation
ATI-Spektren
 phasenabhängig, 85, 104
 von Cäsium, 72, 74
 von Kalium, 75
 winkelaufgelöst, 71, 73
Atomofen, 69
a. u., *siehe* Einheiten, atomare
Ausrichten von Molekülen, 59, 66
Autokorrelation, 43, 79

Bandbreite
 spektrale, 24, 30, 38
 zeitliche, 45, 89, 93
Bauer, D., 107
Becker und Hickl, 69
Bernhard Halle, 68
Besselfunktion, 41
Beugungslimit, 21
B-Integral, 31
Blauverschiebung, 15, 75, 107
Born-Oppenheimer-Näherung, 64
Brechungsindex, 33, 80
Brewsterwinkel, 26, 27, 36
Broglie, L. de, 101
Burle Electro-Optics, 69

Carrier-Envelope Offset, 78, 81
Cäsium, 68, 72
Cavity Dumper, 26
CCD, *siehe* Charge-coupled Device
CEO, *siehe* Carrier-Envelope Offset
Channel closing, 15
Charge-coupled Device, 44, 45
Chirp, 24
 gechirpte Spiegel, 25, 43, 83
Coherent, Inc., 26, 29, 30, 82
COLTRIMS, 48
Cryo-Torr, 67
Cut-Off, 14, 20

D-Linie, 66, 71
Davisson, C., 101
 ΔE , *siehe* Energie, -auflösung
Debye, 17
Delone, N., 10
Dikation, 48, 58, 59, 63, 101
Diskriminator, 69
Dispersion, 25, 26, 78
Doppelbrechung, druckinduziert, 35
Doppelspalt, 101, 102
Driftstrecke, 49, 90, 92

Einheiten, atomare, 113
Einstein, A., x, 5, 101
Einzelschußmessung, 89, 94
Elektronen
 -korrelation, 3, 48
 einzelne, 107
 freie, 12
Emission, stimulierte, 35
Energie
 -auflösung, 51, 70
 Drift-, 53
 Photonen-, 2, 17, 73, 105
 ponderomotive, 11, 15, 16, 109

Rückstoß-, 51, 54
 Zitter-, *siehe* Energie, ponderomotive
 EOM, *siehe* Modulator, elektrooptischer

 $f_{\#}$, *siehe* f -Zahl
 $f - 2f$ -Methode, 79
 $4f$ -Aufbau, 27
 Faisal, F., 58
 Faser
 Hohl-, *siehe* Glas, -kapillare
 Mikrostruktur-, 81
 FAST ComTec, 69
 Feld
 Abzugs-, elektrisches, 49, 51
 Führungs-, magnetisches, 49
 Femtolasers Produktions GmbH, 82
 Fenster, 36
 Brewster-, 34
 Ionisations-, 103
 Suprasil-, 67
 Fiber Tech, 42
 Fouriertransformlimit, 26
 Frantz-Nodvik, 37
 Frequenzkamm, optischer, 79–81
 Full Width at Half Maximum, 21, 24, 54, 77
 FWHM, *siehe* Full Width at Half Maximum
 f -Zahl, 22

 γ , *siehe* Keldysh-Parameter
 Güteschalter, 1, 26
 gain narrowing, 83
 gaußscher Strahl, 22
 Germer, L., 101
 Glas
 -faser, 41
 -kapillare, 39, 41, 68
 -keile, 68, 86, 88, 96

 Hänsch, T., 79
 Hall, J., 79
 Hamiltonoperator, 7, 8
 Harmonische
 hohe, 2, 20, 23, 85, 89, 95
 zweite, 1, 81
 Hartree, D., 113
 Heizstrom, 69
 Helix CTI-Cryogenics, 67
 Helmholtzspulen, 49
 HHG, *siehe* Harmonische, hohe
 Holweckstufe, 93

 IGC APD Cryogenics, 35
 Impuls
 -korrelation, 55
 -verteilung
 für Ar, 56
 für Ar und Ne, 52, 53
 für N₂, 60, 65
 für O₂, 61, 66
 für O₂ und N₂, 59
 phasenabhängig, 98
 Photonen-, 48
 Summen-, 97
 Indium, 35
 Interferenz, 14, 101, 102, 109
 ballistische, 20
 Ionisation, 10
 -rate, 6, 10, 11, 18
 -schwelle, 41, 42
 -schwelle, effektive, 57
 -wahrscheinlichkeit, 58, 103
 Doppel-, 18
 nicht-sequentiell, 2, 3, 18, 51, 58, 63,
 95, 98
 sequentiell, 18, 61
 Feld-, 54, 56, 100
 Gesamt-, 11, 17
 Stoß-, 19, 53, 56, 98
 Tunnel-, 10, 18
 Iseg Spezialelektronik, 69

 Jönsson, C., 102

 Kühlfinger, 35
 Kühlung, 83
 kryogene, 34
 Kalium, 68, 75
 Keldysh, L., 10
 Keldysh-Faisal-Reiss, 13
 Keldysh-Parameter, 11, 16
 Kerrlinse, 25
 KFR, *siehe* Keldysh-Faisal-Reiss
 Kompressor
 Gitter-, 27
 Prismen-, 27
 Proctor-Wise, 27, 83
 konfokaler Parameter, 22
 Kontaktpotential, 64
 Kontrast, 105–107
 Krainov, V., 10
 Krausz, F., 4, 81

 Lamor-Frequenz, 51
 Laser, 1
 -intensität, 31, 37, 43, 51, 97
 -oszillator, 25

100 kHz-, 25
 Argon-Ionen-, 29
 Festkörper-, 82
 Hochenergie-, 2, 94
 Pump-, 28
 LCAO, *siehe* Linear Combination of Atomic Orbitals
 Lecklicht, 45
 Leistung, 26, 29, 31, 37, 38, 44
 Light Wave Synthesizer, 81, 82
 Linear Combination of Atomic Orbitals, 64
 Linse
 achromatische, 68, 71
 thermische, 32, 34, 83
 LWS, *siehe* Light Wave Synthesizer

 M^2 , *siehe* Strehl-Verhältnis
 MCP, *siehe* Micro Channel Plate
 Mehrphotonenionisation, 6, 14
 Messung, kinematisch vollständig, 48, 100
 Micro Channel Plate, 50, 69, 91
 Mode, 29, 30, 40, 42
 Modell des einfachen Mannes, *siehe* Simple Man's Model
 Modenkopplung, 1
 Modulator
 akustooptischer, 26, 83
 elektrooptischer, 44
 Momentanfrequenz, 39
 MPI, *siehe* Mehrphotonenionisation
 Multiscaler, 69, 93
 μ -Metall, 67, 69, 92

 Natrium, 68
 Neon, 51, 54
 Nisoli, M., 39
 NSDI, *siehe* Doppelionisation, nicht-sequentiell
 Nyquist-Theorem, 28

 Ω_R , *siehe* Rabi-Frequenz
 Oktave, 81
 Optik
 gaußsche, 21
 Ionen-, 91
 nichtlineare, 1, 38
 Orbitalsymmetrie, 58

 φ , *siehe* Phase, absolute
 Partnermolekül, 58
 Paulus, G., 4
 Peak Suppression, 6
 Pfeiffer Vacuum, 35, 92

 Phase
 absolute, 67, 78, 79, 83, 96, 99
 CEO-, *siehe* Phase, absolute eines Photoelektrons, 14
 eines Photons, 20
 Gouy-, 22, 69
 nichtlineare, 31
 Phasen
 -anpassung, 20
 -messung, 85
 -meter, 93, 96
 -stabilisierung, 83, 88, 96
 -stabilität, 87
 Photodiode, 68
 Photoeffekt, 2, 5, 48, 101
 Photon, 101
 Piezo Jena, 44
 Plasma, 2, 14, 23
 Plateau
 bei ATI, 2, 3, 6, 14
 bei HHG, 2, 20
 Pockelszelle, 82
 Polarisation
 elliptisch, 58, 71
 linear, 30, 50, 59
 Puls
 -länge, 24, 77
 Attosekunden-, 2, 77, 78
 Femtosekunden-, 24, 78
 Oligozyklen-, *siehe* Puls, Wenigzyklen-Polyzyklen-, 78
 ultrakurzer, *siehe* Puls, Femtosekunden-Wenigzyklen-, 30, 77–79, 83, 102
 Pumpe
 Cryo-, 67
 Turbomolekular-, 35, 67, 92
 Pumpstufe, differentielle, 49, 50

 QMAD, *siehe* Quiet Multiaxial Mode Doubling
 Quadrantendiode, 45
 Quiet Multiaxial Mode Doubling, 29

 Rabi-Oszillation, 16, 17, 67
 Radon, 42
 Raumladung, 23, 90
 Rayleigh-Länge, 22
 Reaktionsmikroskop, 48, 49
 Referenz, 94
 RegA 9050, 26, 36
 Reid, A., 102
 Reisezeit, 20
 Rekombination, 12

Repeller, elektrostatischer, 90, 92
 Repetitionsrate, 23, 25, 26, 45, 80, 84, 94, 101
 Resonanz, Freeman-, 15
 RIMS, 48
 Rottke, H., 4, 47
 Rotverschiebung, 15, 107
 Rubidium, 68, 71, 75, 76
 Rückstreuung, 9, 14, 19

 Sättigung, 6, 11, 16, 18
 SAE-Näherung, *siehe* Single Active Electron
 Sandner, W., 4
 sATI, *siehe* Stereo-ATI Spektrometer
 Sättigung, 71
 Sauerstoff, 58
 Schrödingergleichung, 7, 13, 107, 108, 110
 Schwelle, energetische, 51, 53, 57
 Selbst
 -fokussierung, 33
 -phasenmodulation, 38–40
 Self-steepening, 41
 SFA, *siehe* Starkfeldnäherung
 Shake-Off, 19
 SHG, *siehe* Harmonische, zweite
 Simple-Man's Model, 9, 20
 Single Active Electron, 107
 Skalierungsverhalten, 16
 SLM, *siehe* Spatial Light Modulator
 S-Matrix, 57, 63
 Smirnov, M., 61
 Soliton, 41
 Spatial Light Modulator, 27, 43
 Spectra Physics, 28
 Spektralverbreiterung, 30
 SPM, *siehe* Selbstphasenmodulation
 Störungstheorie, 6
 Stark-Effekt, 14, 16
 Starkfeldnäherung, 8, 85
 Stereo-ATI Spektrometer, 68, 69, 96
 Stickstoff, 58
 Stoßionisation, 12
 Strahl
 -profil, 37
 -stabilisierung, 44, 45
 Strehl-Verhältnis, 21
 Streuung, 12, 51, 86
 Stufenmodell
 Drei-, 9, 10, 58
 Zwei-, 9

 Taylorentwicklung, 70
 Temperaturgradient, 32, 43
 Termschemata für Alkalimetalle, 71

 Thermalisierung, 44
 Thermocoax, 35
 Thermoelement, 35
 Thomson, G., 102
 Time of Flight, 50, 51, 68, 69
 Titan:Saphir, 26, 31, 81
 TOF, *siehe* Time of Flight
 Totzeit, 51, 70
 t_R , *siehe* Reisezeit
 Tunneln, kollektives, 18
 Übergangswahrscheinlichkeit, 7
 Überschall
 -expansion, 48
 -strahl, 49, 50, 53, 96
 UHV, *siehe* Vakuum, Ultrahoch-
 U_p , *siehe* Energie, ponderomotive

 Vakuum
 -kammer, 35, 36
 -manipulator, 69
 Ultrahoch-, 67, 91, 93
 Variation
 der Elliptizität der Polarisierung, 70
 der absoluten Phase, 70
 der Laserintensität, 70
 der Polarisationsachse, 70
 Verschiebetisch, 35, 36
 Volkovzustand, 8, 13
 Volumen
 -effekt, 6, 15, 90, 104
 Fokus-, 91
 Tot-, 42

 Walther, H., 4
 Wärme
 -last, 35
 -leitung, 33, 37
 Wasserfenster, 2
 Weißlicht, 39
 Welcher-Weg-Information, 109
 Wellen
 -brechung, optische, 41
 -frontdetektor, 21
 -funktion, 8
 -gleichung, 22
 -leiter, 39, 40
 Materie-, 101, 107

 Xenon, 42, 58, 68

 Young, T., 4, 101

 Zeitauflösung, 101
 z_R , *siehe* Rayleigh-Länge

Danksagung



CH BIN KEIN großer Freund formeller Lobgesänge, aber ich fürchte, daß ich mich nicht mehr, wie in meiner bahnbrechenden Diplomarbeit, mit einem »All denen, die dem Gelingen dieser Arbeit [...] beigetragen haben, bin ich [...] zu Dank verpflichtet« aus der Affäre ziehen kann. Die Zeiten werden härter und keiner weiß, warum...

Nach dieser leise seufzend verfaßten Einleitung, und auf die Gefahr hin, hernach noch viel kritischer betrachtet zu werden, folgt endlich der vermutlich am motiviertesten gelesene Teil dieser Schrift:

An erster Stelle danke ich selbstverständlich Prof. Dr. Dr. h. c. mult. HERBERT WALTHER dafür, daß er mich in die »MPQ-Familie« aufgenommen und diese Arbeit überhaupt erst möglich gemacht hat. Nicht zu unterschätzen ist auch der tiefe Einblick in die weite Welt der Politik, den ich durch ihn in für mich bisher unerreichter Tiefe erhalten konnte. Dr. habil. GERHARD G. PAULUS (mittlerweile auch Professor, dank einer von langer Hand verfehlten Bildungspolitik leider nicht mehr in deutschen Landen) danke ich für die ausgezeichnete Betreuung und die ungebremste und ansteckende Begeisterung zu allen Fragen von Physik und Technik. Das Dauerlaufen habe ich dennoch nicht angefangen, aber zumindest bin ich nun Macintosh-Besitzer und über die geopolitische Grenze zwischen Bayern und Franken informiert. Meinen Vorgängern und Kollegen Dr. J. FELIX GRASBON und Dr. FABRIZIO LINDNER verdanke ich ein bereits zu Beginn meiner Arbeit funktionierendes Lasersystem, auf das ich aufbauen konnte und eine profunde Einführung in selbiges. Die gute Atmosphäre im Labor tat ihr Übriges. Herrn Baiker danke ich für die nicht unbedingt prompte, aber gewissenhafte Erledigung zahlloser mechanischer Arbeiten, was mir eine gehörige Portion Nerven und zahllose Schlachten mit der Werkstatt erspart hat. Prof. ALEXANDER „SASCHA“ DREISCHUH, dem wohl höflichsten Menschen den ich kenne, danke ich für die gute und angenehme Zusammenarbeit während seiner Aufenthalte in Garching (daß ein Rückbesuch nach Bulgarien nie geklappt hat, ist sehr schade). Zudem hat er durch gutes Beispiel meine persönliche Überzeugungen widerlegt, daß zu viel Arbeit umbringt und man ohne Ellbogeneinsatz keine Karriere machen kann. HANS-PETER SCHÖNAUER danke ich für die (nicht immer spontane) Bereitschaft, alles Unmögliche so kompakt wie möglich zu konstruieren

und der mechanischen Werkstatt für die anschließende exakte Realisierung. Ohne die »COLTRIMS«-Kollaborationsgruppe Dr. habil. HORST ROTTKE, Dr. EKATERINA „RINA“ EREMINA und Dr. XIAOJUN LIU aus der Gruppe von Prof. Dr. WOLFGANG SANDNER würden zahlreiche Ergebnisse dieser Arbeit nicht zustande gekommen sein. Ähnliches gilt für die »Light-Wave-Synthesizer«-Kollaborationsgruppe Dr. ANDRIUS BALTUŠKA (noch jemand, den die Arbeit nicht umgebracht hat) und Dr. ELEFThERIOS GOULIELMAKIS aus der Gruppe von Prof. Dr. FERENC KRAUSZ. Während der Aufenthalte in Wien war auch die Hilfe unseres Kontaktmannes vor Ort, Dr. habil. MATTHIAS LEZIUS, der erfolgreichen Arbeit extrem zuträglich. Nicht zu vergessen auch seine nützlichen Hinweise zu MCPs und Wiener Schnitzel. Aus fachlicher Sicht dürfen auf keinen Fall die deutschen und europäischen Steuerzahler für die Bereitstellung der Forschungsmittel vergessen werden, ohne welche großartige Forschung schlicht nicht möglich ist.

Meine schlechte Angewohnheit, die Arbeit nicht ausschließlich durch kurze Nickerchen zu unterbrechen, wurde von vielen Personen berstärkt und ist vermutlich der Grund dafür, daß ich mich trotz Sprengung der 30er-Marke noch nicht aus dem Fenster gestürzt habe. Von der bewegungstechnischen Front sind hier das MPQ-Badminton-Team WOLFGANG STREMME, BIRGIT LANGE und FABRIZIO LINDNER zu nennen, sowie der Fechtclub der LMU/TU (ZHS bzw. USC), hiervon im Besonderen ANDREAS GÖRMER und TINI SAMMEL. Weltpolitisch bedeutsame Diskussionen, die nicht immer zwingend von physikalischer Relevanz waren, waren im Institut immer möglich und unterhaltsam mit GERHARD PAULUS, Prof. Dr. WOLFGANG LANGE, Dr. PAVEL LOUGOVSKI und FABRIZIO LINDNER. Unterhaltsame Dispute in der gleichen Kategorie gab es vor allem mit WOLFGANG STREMME und BIRGIT LANGE, zwei Menschen bei denen es praktisch keine Themen gibt, zu denen wir auch nur im Entferntesten einer Meinung wären. Den beiden Hutmachern TIBOR WITTMANN und BIRGIT LANGE danke ich für ihr witziges Konstrukt.

Weitere gute Freunde, die ich wegen der abgeschiedenen Lage Münchens nicht so oft sehe, wie ich das gerne täte, sind MARK ULLRICH, SILKE THOMANN, Dr. STEFAN SCHAUER, RINA EREMINA, RÜDIGER KÜHNLE und NOK TSAO. Ohne ihre emotionale Unterstützung in vielen Dingen wäre das Leben um einiges härter für mich. Nicht zuletzt möchte ich meinen Eltern von ganzen Herzen für die allgemeine Rückendeckung in allen Lebenslagen danken.

Anm.: Da es sich hier um eine Dissertation handelt, kann ich akademische Titel unmöglich unterschlagen. Um diese Formalie aber nicht ausarten zu lassen, wird maximal einmal ein Titel pro Person genannt.

Nachtrag: Sollte ich doch jemandes Namen unterschlagen haben, der/die gerne genannt worden wäre, so verweise ich noch einmal auf die einleitenden Sätze der Danksagung. Ich hoffe dort findet sich die richtige Interpretation zu diesem eigentlich ja unverzeihlichen Mißstand! Denn natürlich kann eine Liste wie diese niemals vollständig sein. . .

Erklärung

Hiermit erkläre ich, daß ich diese Dissertation »*Mehrphotonen-Ionisationsprozesse mit intensiven Laserpulsen*« unter Leitung von Prof. Dr. H. Walther und PD Dr. habil G. G. Paulus selbstständig, also ohne unerlaubte Hilfe, ausgeführt habe. Zitate und sinngemäß übernommene Stellen sind im Text explizit als solche gekennzeichnet, deren Quellen sind im Literaturverzeichnis aufgeführt. Ich versichere, daß mit der Publikation der Dissertation keine Rechte Dritter verletzt werden.

Weiter bestätige ich, daß ich diese Arbeit an keiner anderen Universität zur Erlangung eines akademischen Grades eingereicht habe. Frühere Promotionsversuche wurden von mir keine unternommen.

M. Schätzel

München, 23. Jan. 2006

Lebenslauf



Geburtstag: 4. Dezember 1974
Geburtsort: D-40822 Mettmann

Staatsangehörigkeit: deutsch

Familienstand: ledig

Eltern: Reinhard J. Schätzel (Betriebswirt),
Christa H. Schätzel, geb. Todtenhöfer

Geschwister: eine ältere Schwester

Ausbildung:

- 1981 - 1985:** Grundschule Kirchendeller Weg, Mettmann
- 1985 - 1991:** Heinrich-Heine-Gymnasium, Mettmann
- 1991 - 1994:** Markgräfler Gymnasium, Müllheim
Abschluß: Abitur (1,3)

- ab Oktober 1995:** Studium der Physik an der Albert-Ludwigs-Universität in Freiburg i. Br.
- 1998 - 1999:** Auslandsaufenthalt (3 Trimester) zum Studium der Physik an der University of Oregon in Eugene, Oregon, USA
Abschluß: Master of Arts
- ab September 1999:** Studienweiterführung in Freiburg
- Juli 2001:** Abschluß: Diplom (1,9)
- ab Oktober 2001:** Promotion am MPI für Quantenoptik
- März 2006:** Abschluß: Doktor (magna cum laude)

Juli 1994 - Juni 1995: Wehrdienst (W12) bei der Bundeswehr (3./FüUstgRgt 50)

Sprachkenntnisse: englisch, französisch, lateinisch ("Latinum")

Hobbys: Informatik, Fechten, Go, Inline-Skating, Belletristik