

# Ionisation atomarer Ionen in intensiven Laserfeldern

## Masterarbeit



zur Erlangung des Grades Master of Science  
der  
Physikalisch-Astronomischen Fakultät  
der  
Friedrich-Schiller-Universität Jena

vorgelegt von: Philipp Wustelt  
Geb. am: 26.04.1989  
Matrikelnummer: 106859  
Erstgutachter: Prof. Dr. habil. Gerhard G. Paulus  
Zweitgutachter: Prof. Dr. Adrian N. Pfeiffer

Jena, den 2. Dezember 2013

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung und Motivation</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Semiklassisches Modell der Starkfeldionisation</b>	<b>4</b>
2.1	Überblick . . . . .	4
2.2	Quasistatische Ionisationsraten . . . . .	5
2.3	Klassische Bewegung des Elektrons im Laserfeld . . . . .	7
2.3.1	Einfachstes Bild mit $\delta$ -förmigem Atompotential . . . . .	7
2.3.2	Eindimensionales Coulombpotential . . . . .	9
2.3.3	Dreidimensionales Tunnelproblem in parabolischen Koordinaten . . . . .	9
2.3.4	3D-Tunnelionisation in parabolischen Koordinaten mit induzierten Dipol und Starkverschiebung . . . . .	12
2.4	Die kritische Feldstärke . . . . .	14
<b>3</b>	<b>Starkfeldphysik mit intensiven Laserpulsen elliptischer Polarisation</b>	<b>17</b>
3.1	Erzeugung und Beschreibung von Laserpulsen hoher Intensität . . . . .	17
3.2	Kontrolle der Polarisation von Licht . . . . .	18
3.3	Trajektorien in elliptisch polarisierten Laserpulsen . . . . .	23
<b>4</b>	<b>Ionenstrahlapparatur und Lasersystem</b>	<b>27</b>
4.1	Überblick . . . . .	27
4.2	Erzeugung eines Ionenstrahls . . . . .	29
4.3	Laser und Laseroptik . . . . .	31
4.4	Interaktionszone und Strahlüberlagerung . . . . .	33
4.5	Detektorsystem und Auswertung . . . . .	36
4.6	Impulsauflösung . . . . .	38

---

<b>5 Ionenimpulsverteilungen nach n-facher Ionisation von Ne<sup>+</sup></b>	<b>43</b>
5.1 Überblick . . . . .	43
5.2 Einfachionisation (n=1) . . . . .	46
5.3 Doppelionisation (n=2) . . . . .	48
5.4 Dreifachionisation (n=3) . . . . .	50
5.5 Vierfachionisation (n=4) . . . . .	51
<b>6 Rekonstruktion der Ionisationsdynamik</b>	<b>52</b>
6.1 Überblick . . . . .	52
6.2 Elliptizitätskorrigierte Polarkoordinaten . . . . .	52
6.3 Notation der Mehrfachionisationsschritte . . . . .	55
6.4 Entfaltung der Impulsspektren . . . . .	55
6.5 Ergebnisse der Fitmethode . . . . .	61
6.6 Bestimmung der Ionisationszeitpunkte . . . . .	64
6.7 Vergleich mit Simulationen . . . . .	66
<b>7 Einfluss des Coulombfeldes und Korrelationen</b>	<b>73</b>
7.1 Keldyshparameter . . . . .	73
7.2 Coulomb - Verdrehung in Einfachionisation . . . . .	74
7.3 Coulomb - Verdrehung in Mehrfachionisation . . . . .	78
7.4 Vergleich mit Simulationen . . . . .	80
7.5 Korrelation in Richtung der Doppelionisation . . . . .	83
<b>8 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>86</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>92</b>

# Kapitel 1

## Einleitung und Motivation

Die Fortschritte in der Lasertechnologie erlauben die Erzeugung von Laserpulsen mit Pulsdauern von wenigen Femtosekunden und Intensitäten, die vergleichbar sind mit dem Coulombfeld zwischen Elektronen und Atomen. Mit diesen Laserpulsen kann die Atom-Laser-Wechselwirkung im Regime sehr starker Laserfelder untersucht werden [1]. Dabei werden viele interessante Phänomene beobachtet, deren Dynamik von der instantanen elektrischen Feldstärke des anregenden Laserpulses bestimmt wird und mit der Ionisation eines Elektrons aus einem Atom beginnt. Nach der Ionisation wird das Elektron im Laserfeld beschleunigt und kann abhängig von der Phase des Laserfeldes am Ionisationszeitpunkt vom Laserfeld zurück auf das Ion beschleunigt werden. Dabei sind mehrere Effekte möglich. Das Elektron kann elastisch gestreut werden und dadurch hohe Energien aufnehmen. Dies führt zur Ausbildung eines ausgedehnten Plateaus in den Photoelektronenspektren [2, 3]. Ist die Streuung inelastisch, kann das Elektron auch ein anderes Elektron aus der Elektronenhülle ionisieren und nichtsequentielle Doppel- oder Mehrfachionisation erzeugen [4, 5]. Weiterhin besteht die Möglichkeit, dass das Elektron mit seinem Ion rekombiniert und dabei hochenergetische Photonen, sogenannte Strahlung Höherer Harmonischer, emittiert. Auf diesem Prozess beruht die Erzeugung von Attosekundenpulsen [6].

Der erste, auslösende Schritt, auf denen alle diese Effekte basieren, ist der Prozess der Starkfeldionisation. Die Starkfeldionisation kann durch ein zweistufiges semiklassisches Modell erklärt werden. Im ersten Schritt wird das Elektron durch einen quantenmechanischen Ionisationsschritt aus dem Atom befreit. Es wird angenommen, dass dies mit einem Tunnelprozess des Elektrons durch das vom Laserfeld verbogene Atompotential beschrieben werden kann. Danach wird das Elektron als klassisches Teilchen behandelt und bewegt sich in der Kombination von Atompotential und Laserfeld.

Die Schwierigkeit des semiklassischen Modells besteht darin, den Schritt von der Tunnelio-

nisation zu einem klassischen Teilchen korrekt zu beschreiben [7]. Dazu sind genaue Ionisationsraten notwendig, die die zeitabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit in ein klassisches Ensemble von Startzeiten für die Elektronen überführen. Zusätzlich muss die Position des Tunnelausganges als Startort und die Geschwindigkeitsverteilung des Elektrons am Tunnelausgang als Anfangsgeschwindigkeit bekannt sein, um die Impuls- und Energieverteilung der Elektronen berechnen zu können.

Nach der Ionisation wird die Bewegung des Elektrons vom Laserfeld dominiert. Die experimentellen Untersuchungen von Pfeiffer *et al.* haben gezeigt, dass auch das Coulombfeld des zurückbleibenden Ions einen kleinen Einfluss auf die Elektronenbahn nimmt [8]. In der Impulsverteilung wird das durch eine Verdrehung des Maximum der Zählrate nach Ionisation mit elliptischer Polarisierung sichtbar.

Es stellte sich heraus, dass insbesondere die exakte Position des Tunnelausgangs einen kritischen Parameter zum Verständnis dieses Effektes darstellt. Die Resultate der Einfachionisation wurden durch Berücksichtigung der komplexen Wechselwirkung des Elektrons mit dem atomaren Coulombpotential, sowie unter Einbeziehung der Starkverschiebung und der Multi-Elektroneneffekte durch semiklassischen Simulationen (TIPIS-Modell) reproduziert. Dabei wurden die Ionisationszeiten mit einer quasistatischen Tunnelrate berechnet, die durch quantenmechanische Simulationen von Tong *et al.* korrigiert wurde [9].

Bei der Fortsetzung der Untersuchung auf die sequentielle Doppelionisation wurde jedoch festgestellt, dass nur der Ionisationszeitpunkt des ersten Elektrons mit den theoretischen Vorhersagen der korrigierten Ionisationsrate von Tong *et al.* [9] übereinstimmt. Das zweite Elektron erscheint hingegen im Vergleich zur Theorie deutlich zu früh und die Elektronenemission zeigt eine unerwartete Korrelation [10, 11].

Diese Ergebnisse führten zu einer Diskussion über die Annahme, dass im Prozess der sogenannten sequentiellen Doppelionisation die Elektronen unabhängig voneinander betrachtet werden können und ob es Korrelationen gibt, die nichts mit Rückstreuung des ersten Elektrons zu tun haben.

Es gab zahlreiche Versuche durch Anpassung des klassischen Modells diese experimentellen Ergebnisse zu reproduzieren. Zhou *et al.* berichten, dass in das klassische Modell die Elektron-Elektron-Korrelation einbezogen werden muss, um Simulationen mit dem Experiment in Einklang zu bringen [12]. Wang *et al.* konnten allein durch Anpassung des effektiven Atompotentials, aber unter Auslassung der Elektron-Elektron-Korrelation die Ionisationszeitpunkte erklären [13, 14].

Fleischer *et al.* berichteten über eine Winkelkorrelation in der Elektronenemission zwischen den beiden in der Doppelionisation von Neon ionisierten Elektronen [15]. Sie zeigten, dass

die kohärente Bewegung der Elektronenlücke, die durch die Ionisation eines Elektrons ausgelöst wird, die Ionisationsrate und die Emissionsrichtung des zweiten Ionisationsschrittes beeinflusst.

Die Prozesse, die die Ionisation mehrerer Elektronen bestimmen, sind kompliziert und noch nicht vollständig verstanden. Zudem gibt es bis jetzt nur experimentelle Arbeiten, die sich auf die Doppelionisation von Atomen beschränken.

Das Ziel dieser Arbeit ist es, die Impulsverteilungen von Ionen nach Wechselwirkung eines Ionenstrahls mit intensiven Laserpulsen in Abhängigkeit der Laserintensität und dem Polarisationszustand der Laserstrahlung zu untersuchen.

Dabei sind besonders die Ionisationsfeldstärken und die Ionisationszeitpunkte sowie die oben erwähnte Verdrehung der maximalen Zählrate der Impulsverteilungen gegenüber der Laserpolarisation in der Einfachionisation von Interesse.

Bisherige experimentelle Untersuchungen beschränkten sich auf die Ionisation von Edelgasatomen [16, 17] und Molekülen [18]. Diese besitzen eine abgeschlossene Elektronenschale. In dieser Arbeit wird zum ersten Mal die Ionisation von Ionen der Edelgase untersucht. Aufgrund des höheren Ladungszustandes der Ionen sind die Elektronen in einem deutlich stärkeren Coulombpotential gebunden. Zur Ionisation der Ionen sind sehr hohe Feldstärken notwendig, die durch sehr intensive Laserpulse erzeugt werden.

Infolge der höheren Ionisationsintensitäten nehmen die Ionen im Laserfeld einen größeren Impuls auf. Dies ermöglicht eine deutlich höhere Auflösung als die Ionisation von Atomen mit niedrigerem Ionisationspotential.

Die Verwendung sehr intensiver Laserpulse erlaubt die Beobachtung einer größeren Anzahl von Ladungszuständen als bei den oben genannten Experimenten. Damit können die Struktur der Impulsverteilungen der Ionen nach mehrfacher Ionisation studiert werden und die zu Ionisation verantwortlichen Feldstärken und Ionisationszeiten ermittelt werden.

Dies ermöglicht auch die Abhängigkeit der Ionisation vom Zustand der Elektronenkonfiguration zu untersuchen und es ergeben sich Einblicke in die Dynamik der Elektronenhülle nach der Ionisation.

## Kapitel 2

# Semiklassisches Modell der Starkfeldionisation

### 2.1 Überblick

Das semiklassische Modell der Starkfeldionisation betrachtet die Wechselwirkung von Atomen und intensiven Laserfeldern innerhalb der sogenannten „Single-Activ-Electron-Approximation“ (SAE). Dabei wird statt des Atoms mit allen Elektronen im Laserfeld nur ein einzelnes aktives Elektron betrachtet, das in einem effektiven Atompotential gebunden ist und mit dem Laserfeld in Wechselwirkung tritt [3].

Im Rahmen dieser Approximation kann die Starkfeldionisation im Sinne eines zweistufigen Modells verstanden werden. Dabei wird im ersten Schritt das Elektron durch einen quantenmechanischen Ionisationsprozess aus dem Atom befreit. Im Anschluss an die Ionisation wird das Elektron als klassisches Teilchen betrachtet, welches sich in der Kombination von Atompotential und Laserfeld bewegt. Dies wird mit der klassischen Bewegungsgleichung beschrieben, die in atomaren Einheiten

$$\frac{d^2\vec{r}}{dt^2} = -\vec{E}(t) - \nabla V(r). \quad (2.1)$$

lautet. Beginnend von der allgemeinen Lösung

$$\frac{d\vec{r}(t)}{dt} = - \int_{t_0}^t [\vec{E}(t') + \nabla V(r(t'))] dt' + \vec{v}_0. \quad (2.2)$$

können die Messgrößen, wie die Impuls- und Energieverteilung, durch Integration berechnet werden.

Eine Schwierigkeit innerhalb dieser Betrachtungen stellt der Ionisationsschritt dar. Es werden Ionisationsraten benötigt, die es erlauben, die Wahrscheinlichkeit für eine Ionisation mit

Subzyklengenauigkeit zu bestimmen, um ein klassisches Ensemble für die Startzeiten  $t_0$  zu finden. Weiterhin müssen die Anfangsgeschwindigkeit und Startorte gefunden werden, um die Lösung der klassischen Bewegungsgleichungen für das Ensemble zu erlauben [7].

## 2.2 Quasistatische Ionisationsraten

Die zeitabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit kann im Rahmen der Theorie von Keldysh mit einer quasistatischen Approximation der Rate der Tunnelionisation beschrieben werden [19].

Keldysh unterteilte die Ionisation in einem starken, zeitlich veränderlichen Feld in die beiden Grenzfälle der Tunnelionisation und der Multiphotonenionisation. Um zwischen diesen beiden Ionisationsmechanismen zu unterscheiden, wird der dimensionslose Parameter  $\gamma$  eingeführt. Die Idee der Tunnelionisation beruht darauf, dass das Elektron durch die Potentialbarriere tunneln kann, die durch die Superposition des Laserfeldes mit dem atomaren Coulombpotential in jeden Halbzyklus der Laserfeldoszillation entsteht (siehe Abb. 2.1). Abhängig von der Frequenz des Laserfeldes, kann die Barriere als quasistatisch angesehen und die Ionisation mit der Tunnelrate für zeitlich konstante elektrische Felder beschrieben werden [7]. Der Parameter  $\gamma$  vergleicht daher die charakteristische Zeitskala der Bewegung des Elektrons unter der Barriere mit der Laserfrequenz  $\omega_L$ . Mit der Bindungsenergie bzw. Ionisationsenergie des Elektrons  $I_p$ , berechnet sich der Keldyshparameter in atomaren Einheiten zu

$$\gamma = \frac{\omega_L}{\omega_{\text{Tunnel}}} = \frac{\omega \sqrt{2I_p}}{E}. \quad (2.3)$$

Bei elliptischer Laserpolarisation (Elliptizität  $\epsilon > 0$ ), aber gleicher Intensität, ist die maximale Feldstärke  $E_{\text{max}} = \frac{\sqrt{I}}{\sqrt{1+\epsilon^2}}$  geringer und es folgt ein höherer Keldysh-Parameter  $\gamma_{\text{elliptisch}} = \frac{\omega \sqrt{2I_p}}{E_{\text{max}}} = \frac{\omega \sqrt{2I_p(1+\epsilon^2)}}{\sqrt{I}}$ .

Für den Fall großer Wellenlänge und hoher Intensität ( $\gamma \ll 1$ ) ist die Barriere statisch und das Elektron kann quasistatisch tunneln. Für geringere Intensitäten und kurze Wellenlängen bei  $\gamma \gg 1$  wird die Ionisation hingegen als Multiphotonenprozess verstanden, bei dem das Elektron aus dem Atom durch die Absorption mehrerer Photonen frei wird.

Wenn die Ionisation über Tunneln beschrieben werden kann, für  $\gamma \ll 1$ , wird die quasistatische Approximation der Tunnelrate genutzt, die in atomaren Einheiten folgende Gestalt hat:

$$\Gamma_{\text{qs}}(t) = A \cdot I_p \left( \frac{2\sqrt{2I_p^3}}{|E(t)|} \right)^{2n^* - |m| - 1} \exp \left( -\frac{2\sqrt{2I_p^3}}{3|E(t)|} \right), \quad (2.4)$$

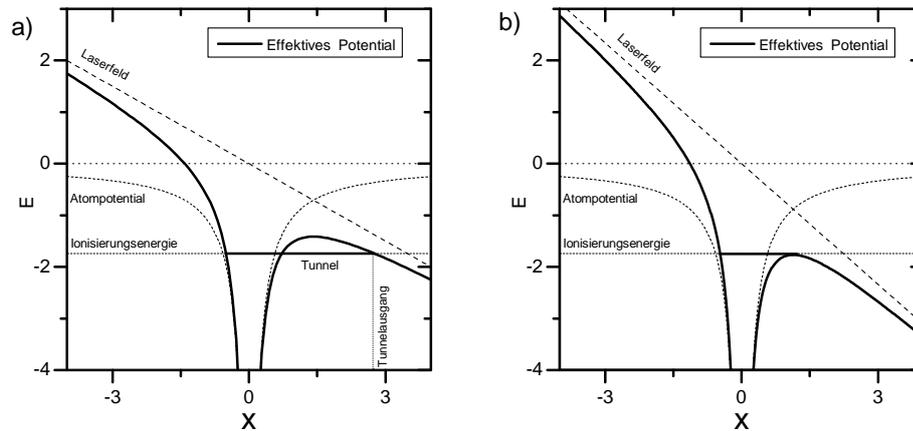


Abbildung 2.1: Schematische 1D-Darstellung der Bildung einer Potentialbarriere aus Überlagerung von atomarem Potential und Laserfeld. a) Das Elektron kann aus dem gebundenen Zustand ins Kontinuum tunneln. b) Das effektive Potential wird durch das Laserfeld soweit abgesenkt, dass das Elektron ohne Tunneln ins Kontinuum gelangt (Prozess der „Over-the-barrier ionization“, siehe Kap. 2.4)

wobei  $E(t)$  die instantane elektrische Feldstärke,  $I_p$  das Ionisationspotential des Atoms,  $n^* = Z/\sqrt{2I_p}$  die effektive Hauptquantenzahl,  $Z$  der Ladungszustand und  $m$  die Projektion des Drehimpulses  $l$  in Richtung der Laserpolarisation darstellt [20]. Der Koeffizient  $A$  ist ein Ergebnis der Winkelabhängigkeit der Wellenfunktion und hängt ebenfalls von dem Drehimpuls  $l$  und seiner Projektion  $m$  ab.

Die Rate ist eine hochgradig nichtlineare Funktion der elektrischen Feldstärke. Aufgrund der exponentiellen Abhängigkeit ist die Ionisation an den Maxima des elektrischen Feldes lokalisiert. Dies ist entscheidend für die weitere Bewegung des Elektrons im Laserfeld.

Die Gl. 2.4 zeigt, dass die Ionisationsrate von der Form des Orbitals des ionisierten Elektrons, genauer dem Drehimpuls  $l$  bzw. seiner Projektion  $m$  auf die Laserpolarisationsachse abhängt.

Von Yudin und Ivanov wurde eine Korrektur der quasistatischen Rate entwickelt, die auch für einen Bereich mit  $\gamma \approx 1$  gültig ist, in dem die quasistatische Tunnelrate die Ionisationsrate nicht korrekt beschreibt [21]. Für hohe Feldstärken wird angenommen, dass die Tunnelbarriere so weit nach unten gedrückt wird, dass die Bindungsenergie des Elektrons über der Barriere liegen kann (siehe Kap.2.4). In diesem Bereich sollte die quasistatische Rate die Ionisation überbewerten. Um dies zu korrigieren, wurde eine auf der quasistatischen Rate basierende empirische Formel entwickelt, deren Koeffizienten durch Vergleich mit numerischen Lösungen der zeitabhängigen Schrödingergleichung überprüft wurden [9]. Es existieren einige weitere klassische und numerische Ansätze zur Erweiterung der quasistatischen Rate in den Bereich der kritischen Feldstärke [22, 23].

Zur Berechnung der Ionisationszeiten bzw. der tatsächlichen zeitabhängigen Ionisationswahrscheinlichkeit muss die Entleerung des Ladungszustandes  $n$  durch Ionisation zu höheren Ladungszuständen berücksichtigt werden [16, 24]. Dazu muss die Ionisationsrate mit der Wahrscheinlichkeit  $P_n(t)$ , das Atom in diesem Ladungszustand anzutreffen, gewichtet werden. Für die Ionisation des ersten Ladungszustandes lautet die zeitabhängige Ionisationsrate

$$\frac{dP_0(t)}{dt} = -\Gamma_0(t)P_0(t). \quad (2.5)$$

Für die höheren Ladungszustände  $n > 0$  muss dementsprechend ein Gleichungssystem betrachtet werden, bei dem die Populationsänderung in jedem Ladungszustand durch folgende Differentialgleichung beschrieben wird

$$\frac{dP_n(t)}{dt} = \Gamma(t)_{n-1}P_{n-1}(t) - \Gamma_n(t)P_n(t). \quad (2.6)$$

## 2.3 Klassische Bewegung des Elektrons im Laserfeld

### 2.3.1 Einfachstes Bild mit $\delta$ -förmigem Atompotential

Im semiklassischen Modell tunnelt das Elektron zum Zeitpunkt  $t_0$ , der sich aus den Ionisationsraten ergibt, aus dem Atom parallel zur instantanen Laserpolarisationsrichtung und erscheint mit einer Anfangsgeschwindigkeit  $v_0$  am Ausgang des Tunnels. Für die Beschreibung der Trajektorie des Elektrons ist diese Position der Startort  $r_0$ .

Wenn die Position des Tunnelausganges weit vom Atom entfernt ist, wird die Bewegung des Elektrons nach der Ionisation vom Laserfeld dominiert. Es stellt sich heraus, dass die Oszillationsamplitude des Elektrons im Feld groß ist im Vergleich zur Ausdehnung des Atoms [3]. Im einfachsten Fall kann das Atompotential völlig vernachlässigt werden. Mathematisch kann dieses Potential mit kurzer Reichweite (engl. „Short-Range-Potential“) durch ein  $\delta$ -Potential beschrieben werden. Für ein Atompotential dieser Form kann der Tunnelausgang  $r_0$  in atomaren Einheiten bei eindimensionaler Betrachtung des Weges des Elektrons unter dem Potentialberg für  $V_0\delta(x) + E \cdot x = -I_p$  entlang der x-Achse berechnet werden und beträgt

$$x_e = -\frac{I_p}{E}. \quad (2.7)$$

Für die weitere Bewegung des Elektrons spielt das Potential keine Rolle und die Bewegungsgleichung vereinfacht sich in atomaren Einheiten zu

$$\frac{d}{dt}\vec{v}(t) = -\vec{E}(t) \quad (2.8)$$

Wenn die Anfangsgeschwindigkeit des Elektrons  $v_0 = 0$  angenommen wird, ist die Lösung

$$\vec{v}(t) = - \int_{t_0}^t \vec{E}(t') dt' = \vec{A}(t) - \vec{A}(t_0). \quad (2.9)$$

Damit besteht die Geschwindigkeit aus einem konstanten Summand  $\vec{p} = -\vec{A}(t_0)$ , dem Driftimpuls, der gleichbedeutend ist mit dem Impuls, den das Elektron nach dem Ende des Laserpulses besitzt und mit dem es auf einen Detektor trifft, und einem zweiten Summand, der mit der Laserphase oszilliert und proportional zu dem instantanen Vektorpotential  $\vec{A}(t)$  ist. Während der Driftimpuls des Elektrons dem Vektorpotential zum Zeitpunkt der Ionisation  $t_0$  folgt, hängt die den Ionisationszeitpunkt bestimmende Ionisationsrate exponentiell von der elektrischen Feldstärke ab. Dadurch tritt die Ionisation an den Maxima der Feldstärke auf, so dass für lineare Polarisation der Driftimpuls um Null liegt, da Vektorpotential und Feldstärke eine Phasenverschiebung von  $90^\circ$  zueinander aufweisen. Wenn der maximale Impuls erreicht wird, verschwindet die Ionisationsrate.

Durch weitere Integration der Bewegungsgleichung erhält man die Position  $\vec{r}(t)$  des Elektrons mit

$$\vec{r}(t) = \int_{t_0}^t \vec{A}(t') dt' + v_D(t - t_0) + \vec{r}(t_0) = \vec{\alpha}(t, t_0) + v_D(t - t_0) + \vec{r}(t_0). \quad (2.10)$$

Die Bewegung des Elektrons wird durch eine Oszillationsbewegung  $\vec{\alpha}(t, t_0) = \int_{t_0}^t \vec{A}(t') dt'$  beschrieben, die mit einer gleichförmigen Bewegung überlagert ist.

Für den einfachsten Fall eines linear polarisierten monochromatischen Laserfeldes  $\vec{E}(r, t) = \vec{e}_x E_0 \cos(\omega t)$  folgt die Oszillationsbewegung des Elektrons  $\vec{\alpha}(t, t_0) = \vec{e}_x \alpha_0 [\cos(\omega t) - \cos(\omega t_0)]$  und damit eine Bewegung entlang der Laserpolarisation

$$x(t, t_0) = x_0 + \alpha_0 [\cos(\omega t) - \cos(\omega t_0) - \omega(\sin(\omega t_0)(t - t_0))] \quad (2.11)$$

mit

$$\alpha_0 = \frac{E_0}{\omega^2}. \quad (2.12)$$

Für lineare Polarisation beschreibt die Trajektorie des Elektrons nur eine Linie in der Laserpolarisationsrichtung, während sich für elliptische Polarisation eine elliptische Bewegung ergibt

$$\begin{pmatrix} x(t, t_0) \\ y(t, t_0) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} x_0 \\ y_0 \end{pmatrix} + \frac{\alpha_0}{\sqrt{1 + \epsilon^2}} \begin{pmatrix} [\cos(\omega t) - \cos(\omega t_0) - \omega(\sin(\omega t_0)(t - t_0))] \\ \epsilon[\sin(\omega t) - \sin(\omega t_0) - \omega(\cos(\omega t_0)(t - t_0))] \end{pmatrix}. \quad (2.13)$$

Eine aus den Bewegungsgleichungen des Elektrons abgeleitete charakteristische Größe ist die ponderomotive Energie. Die über einen optischen Zyklus  $T$  des Laserfeldes gemittelte

kinetische Energie des Elektrons beträgt

$$E_{\text{kin}} = \frac{1}{2} \langle \vec{v}(t)^2 \rangle_{\text{T}} = \frac{\bar{p}^2}{2} + \frac{\langle \vec{A}(t)^2 \rangle_{\text{T}}}{2} = E_{\text{Drift}} + U_{\text{p}}. \quad (2.14)$$

Dabei wird  $U_{\text{p}} = \frac{1}{2} \langle \vec{A}(t)^2 \rangle_{\text{T}}$  als ponderomotive Energie bezeichnet und ist die über einen Zyklus gemittelte kinetische Energie der Oszillationsbewegung des Elektrons im linear polarisierten Laserfeld. Da viele Effekte der Starkfeldphysik mit  $U_{\text{p}}$  skalieren, ist eine andere Formel für eine gegebene Laserintensität  $I$  und Wellenlänge  $\lambda$  nützlich:  $U_{\text{p}}[\text{eV}] = 0,1 \cdot I[\text{W}/\text{cm}^2] \cdot \lambda^2[\text{m}]$ . Die Driftenergie  $\frac{\bar{A}(t_0)^2}{2}$  der Elektronen nimmt für lineare Polarisation Werte zwischen 0 und  $2 U_{\text{p}}$  an, während für elliptische Polarisation (Elliptizität  $\epsilon$ ) nur Werte im Intervall  $\frac{2\epsilon^2}{1+\epsilon^2} U_{\text{p}} \leq E_{\text{Drift}} \leq \frac{2}{1+\epsilon^2} U_{\text{p}}$  möglich sind. Für exakt zirkulare Polarisation tritt nur  $U_{\text{p}}$  auf. Auch zur quantitativen Beschreibung anderer Phänomene der Starkfeldphysik, wie z.B. maximale Energie von Elektronen nach Rückstreuung am Ion, stellt  $U_{\text{p}}$  eine charakteristische Größe dar.

### 2.3.2 Eindimensionales Coulombpotential

Experimentelle Ergebnisse legen nahe, dass das im vorangegangenen Kapitel vorgestellte Konzept der Vernachlässigung der Wechselwirkung zwischen Atom und Elektron auf die Bewegung des Elektrons eine zu starke Approximation darstellt. Um den Einfluss des Atompotentials zu berücksichtigen, kann der eindimensionale Ansatz der Superposition eines Coulombförmigen Atompotentials mit dem Laserfeld in der Richtung der Laserpolarisation verwendet werden. Dann hat das Potential die Form  $V = -Z/x$ , wobei  $Z$  die Ladungszahl des verbleibenden Ions ist [25]. Für dieses Potential folgt der Tunnelausgang durch Lösung von  $-Z/x + E \cdot x = -I_{\text{p}}$  mit einer quadratischen Gleichung zu

$$x_{\text{e}} = -\frac{1}{2E} (I_{\text{p}} + \sqrt{I_{\text{p}}^2 - 4ZE}). \quad (2.15)$$

Damit wird angenommen, dass das Tunnelproblem als eindimensionales Problem entlang der Richtung der Laserpolarisation betrachtet werden kann.

Eine Separation der Bewegung in Richtung des Feldes von den transversalen Koordinaten ist nur dann möglich, wenn das Potential nicht von diesen Koordinaten abhängt.

### 2.3.3 Dreidimensionales Tunnelproblem in parabolischen Koordinaten

Das Wasserstoffatom besitzt eine Symmetrie, die es ermöglicht die Schrödingergleichung für ein im Coulomb-Potential gebundenes Elektron unter Nutzung der parabolischen Koordinaten zu separieren [26].

Die Schrödingergleichung für ein Wasserstoffatom in einem homogenen elektrischen linear polarisierten Feld lautet

$$\left(\frac{1}{2}\Delta + I_p + \frac{1}{r} - Ez\right)\psi = 0. \quad (2.16)$$

Die parabolischen Koordinaten  $(\xi, \eta, \phi)$  können aus den kartesischen über

$$\begin{aligned} \xi &= r + z \\ \eta &= r - z \\ \phi &= \arctan \frac{y}{x} \end{aligned} \quad (2.17)$$

und umgekehrt

$$\begin{aligned} x &= \sqrt{\xi\eta} \cos \varphi \\ y &= \sqrt{\xi\eta} \sin \varphi \\ z &= \frac{1}{2}(\xi - \eta) \\ r &= \sqrt{x^2 + y^2 + z^2} = \frac{1}{2}(\xi + \eta) \end{aligned} \quad (2.18)$$

berechnet werden. Flächen mit  $\xi = 0$  und  $\eta = 0$  beschreiben Rotationsparabolide. Der Laplaceoperator hat in parabolischen Koordinaten folgende Gestalt:

$$\Delta = \frac{4}{\xi + \eta} \left[ \frac{\partial}{\partial \xi} \left( \xi \frac{\partial}{\partial \xi} \right) + \frac{\partial}{\partial \eta} \left( \eta \frac{\partial}{\partial \eta} \right) \right] + \frac{1}{\eta\xi} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} \quad (2.19)$$

Die Schrödingergleichung lautet dann

$$\frac{4}{\xi + \eta} \left[ \frac{\partial}{\partial \xi} \left( \xi \frac{\partial \psi}{\partial \xi} \right) + \frac{\partial}{\partial \eta} \left( \eta \frac{\partial \psi}{\partial \eta} \right) \right] + \frac{1}{\eta\xi} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \phi^2} + 2 \left( I_p + \frac{2}{\eta + \xi} - \frac{E}{2}(\xi - \eta) \right) \psi = 0. \quad (2.20)$$

Der Ansatz für die Eigenfunktionen  $\psi$  hat die Form  $\psi = \frac{1}{\sqrt{2\pi\xi\eta}} f_1(\xi) f_2(\eta) e^{i\phi}$ , wobei  $m$  die magnetische Quantenzahl bezeichnet. Damit führt die Separation zu den Gleichungen

$$\begin{aligned} \frac{d}{d\xi} \left( \xi \frac{df_1}{d\xi} \right) + \left( \frac{I_p}{2}\xi - \frac{m^2}{4\xi} - \frac{E}{4}\xi^2 \right) f_1 &= -\beta_1 f_1 \\ \frac{d}{d\eta} \left( \eta \frac{df_2}{d\eta} \right) + \left( \frac{I_p}{2}\eta - \frac{m^2}{4\eta} + \frac{E}{4}\eta^2 \right) f_2 &= -\beta_2 f_2 \\ \beta_1 + \beta_2 &= 1. \end{aligned} \quad (2.21)$$

Werden diese Gleichungen im Rahmen der Störungstheorie für kleine Feldstärken  $E$  gelöst, ist das Ergebnis die Bindungsenergie  $E_B$  des Wasserstoffatoms im elektrischen Feld in zweiter Näherung mit den parabolischen Quantenzahlen  $n_1$  und  $n_2$

$$E_B = -\frac{1}{2n^2} + \frac{3}{2}En(n_1 - n_2) - \frac{E^2}{16}n^4[17n^2 - 3(n_1 - n_2)^2 - 9m^2 + 19] + \mathcal{O}(E^3). \quad (2.22)$$

Die Energie ergibt sich aus der Summe der ungestörten Energiewerte und dem linearen Stark-effekt sowie dem quadratischen Starkeffekt. Da nur für das Wasserstoffatom die Zustände mit verschiedenen  $l$ -Werten (bei gleicher Hauptquantenzahl  $n$ ) entartet sind, erfahren die Niveaus des Wasserstoffatoms auch eine zur ersten Potenz des Feldes proportionale Aufspaltung. Der quadratische Effekt ist negativ, d.h. er führt zur Absenkung der Energie. Die Starkeffekte sind zu  $n^2$  bzw.  $n^6$  proportional. Der Effekt wird daher umso stärker, je weiter das Elektron vom Kern entfernt ist, da dabei das Dipolmoment des Atoms größer wird. Gleichzeitig nimmt der Absolutbetrag der Energie bei steigender Hauptquantenzahl schnell ab. Zu beachten ist, dass die Störungsrechnung nur für Störungen gültig ist, die klein gegen die Energie der Niveaus sind.

Die Gleichungen 2.21 können über die Substitution  $f_1 = \chi_1/\sqrt{\xi}$  bzw.  $f_2 = \chi_2/\sqrt{\eta}$  in die Gleichungen

$$\begin{aligned} \frac{d^2\chi_1}{d\xi^2} + \left( \frac{I_p}{2} + \frac{\beta_1}{\xi} - \frac{m^2-1}{4\xi^2} - \frac{E}{4}\xi \right) \chi_1 &= 0 \\ \frac{d^2\chi_2}{d\eta^2} + \left( \frac{I_p}{2} + \frac{\beta_2}{\xi} - \frac{m^2-1}{4\eta^2} + \frac{E}{4}\eta \right) \chi_2 &= 0 \end{aligned} \quad (2.23)$$

überführt werden, die dann die Form eindimensionaler Schrödinger-Gleichungen annehmen. Die potentielle Energie lässt sich zu

$$\begin{aligned} V_1(\xi, E) &= -\frac{\beta_1(E)}{2\xi} + \frac{m^2-1}{8\xi^2} + \frac{E\xi}{8} \\ V_2(\eta, E) &= -\frac{\beta_2(E)}{2\eta} + \frac{m^2-1}{8\eta^2} - \frac{E\eta}{8} \end{aligned} \quad (2.24)$$

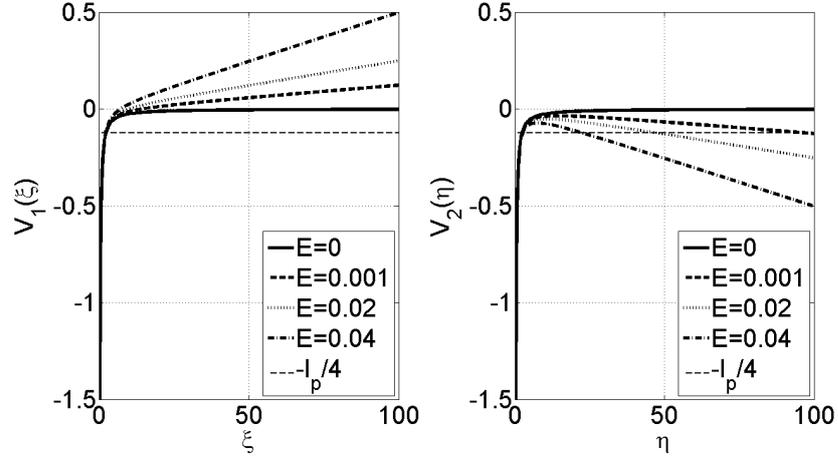
ablesen. Die Gesamtenergie eines Teilchens wird dabei durch  $I_p/4$  repräsentiert. Der Verlauf der Potentiale ist in Abb. 2.2 dargestellt. In parabolischen Koordinaten findet die Ionisation in Richtung der  $\eta$ -Koordinate statt. Für hohe Feldstärken entsteht entlang  $\eta$  ein zweiter Bereich, in dem die Bewegung des Elektrons erlaubt ist. Das Elektron kann durch den dazwischen liegenden Potentialwall tunneln [26].

Mit der Beschreibung des Tunnelprozesses mit dem Potential  $V_2$  kann die Position des Tunnelausganges in parabolischen Koordinaten über  $V_2(\eta_e, E) = -\frac{I_p}{4}$  bestimmt werden [25]. Dies liefert eine kubische Gleichung, die für  $\eta_e \ll \frac{2[(m^2-1)/8]}{\beta_2}$  folgende Lösung hat,

$$\eta_e = \frac{1}{E} \left( I_p + \sqrt{I_p^2 - 4\beta_2 E} \right), \quad (2.25)$$

sodass sich der Tunnelausgang nach der Umrechnung in kartesischen Koordinaten an der Stelle

$$z_e = -\frac{\eta_e}{2} = -\frac{1}{2E} \left( I_p + \sqrt{I_p^2 - 4\beta_2 E} \right) \quad (2.26)$$

Abbildung 2.2: Verlauf der Potentiale  $V_1$  und  $V_2$  in elliptischen Koordinaten für  $m = 0$ .

befindet.

Auf der Beschreibung des Tunnelproblems in parabolischen Koordinaten basiert auch die Herleitung der quasistatischen Wahrscheinlichkeit der Tunnelionisation von Gl. 2.4. Innerhalb dieser Theorie kann ebenfalls auf die Anfangsgeschwindigkeit des Elektrons nach dem Tunneln geschlossen werden [27].

Die Verteilung der Anfangsimpulse der Elektronen nach dem Tunnelprozess kann aus der gebundenen Wellenfunktion des Elektrons berechnet werden, sodass näherungsweise für die Verteilung der longitudinalen Impulse  $p_{\parallel}$

$$|\psi_{\parallel}|^2 \propto |\psi_{0\parallel}|^2 \exp\left(-p_{\parallel}^2 \frac{\omega^2 (2I_P)^{3/2}}{3E^3}\right) \quad (2.27)$$

und für die transversalen Impulse  $p_{\perp}$

$$|\psi_{\perp}|^2 \propto |\psi_{0\perp}|^2 \exp\left(-p_{\perp}^2 \frac{\sqrt{2I_P}}{E}\right) \quad (2.28)$$

folgt. Damit lässt sich die Anfangsimpulsverteilung mit Gaußfunktionen angeben, deren Breite durch die Standardabweichungen  $\sigma_{\parallel} = \sqrt{\frac{3E^3}{2\omega^2(2I_P)^{3/2}}}$  für den longitudinalen Impuls und  $\sigma_{\perp} = \sqrt{\frac{E}{2\sqrt{2I_P}}}$  für den transversalen Impuls bestimmt werden.

### 2.3.4 3D-Tunnelionisation in parabolischen Koordinaten mit induzierten Dipol und Starkverschiebung

Das TIPIS-Model (Tunnel Ionization in Parabolic coordinates with Induced dipol and Stark shift) beruht auf Beschreibung des Coulombproblems in parabolischen Koordinaten (sie-

he Kap. 2.3.3) und berücksichtigt auch den Starkeffekt und Multielektroneneffekte [8, 25].

Durch den statischen Starkeffekt wird die Energie des Elektrons abgesenkt bzw. die Ionisierungsenergie im Vergleich zu dem feldfreien Ionisationspotential  $I_p(0)$  erhöht

$$I_P(E) = I_P(0) + \frac{1}{2}(\alpha_N - \alpha_I)E^2, \quad (2.29)$$

dabei sind  $\alpha_N$  bzw.  $\alpha_I$  die statischen Polarisierbarkeiten des atomaren Systems bzw. des Ions. Diese Näherung für die Starkverschiebungen gilt, solange die Verschiebung klein gegen  $I_p(0)$  ist.

Das TIPIS-Modell betrachtet die Bewegung des Elektrons in dem Potential

$$V(\vec{r}, t) = -\frac{Z}{r} - \frac{\alpha_I \vec{E}(t) \cdot \vec{r}}{r^3}, \quad (2.30)$$

wobei der zusätzliche Multielektronenterm den Einfluss der anderen im Atom gebundenen Elektronen auf die Bewegung des äußeren Elektrons in Form des induzierten Dipols des Ions ausdrückt. Dieses Potential ist jedoch nicht für kleine Distanzen gültig [28].

Eine Separation in parabolischen Koordinaten unter Annahme dieses Potentials ist allgemein nicht möglich. Das Problem ist erst für  $\xi/\eta \ll 1$  separierbar, was für die relevanten Werte von  $\xi$  und  $\eta$  der Fall ist [8]. Damit folgt für die separierten Gleichungen analog zu Gl. 2.24

$$\begin{aligned} \frac{d^2 f_1}{d\xi^2} + 2 \left( -\frac{I_p}{4} - V_1(\xi, E) \right) f_1 &= 0 \\ \frac{d^2 f_2}{d\eta^2} + 2 \left( -\frac{I_p}{4} - V_2(\eta, E) \right) f_2 &= 0 \end{aligned} \quad (2.31)$$

$$\begin{aligned} V_1(\xi, E) &= -\frac{\beta_1(E)}{2\xi} + \frac{m^2 - 1}{8\xi^2} + \frac{E\xi}{8} \\ V_2(\eta, E) &= -\frac{\beta_2(E)}{2\eta} + \frac{m^2 - 1}{8\eta^2} - \frac{E\eta}{8} + \frac{\alpha_I E}{\eta^2}. \\ \beta_1(E) + \beta_2(E) &= Z \end{aligned} \quad (2.32)$$

Eine Herleitung für die Separationskonstante  $\beta_1(E) = (1 + |m|) \frac{\sqrt{2I_p(E)}}{2}$  findet sich bei Bisgaard *et al.* [29].

Die Berechnung der Position des Tunnelausganges verändert sich im TIPIS-Modell gegenüber den parabolischen Koordinaten durch die Hinzunahme des Multielektronentermes und durch die Verschiebung der Bindungsenergie  $I_p = I_p(E)$  infolge der Berücksichtigung des Starkeffekts. Für  $\eta_e \ll \frac{2[\alpha_I E + (m^2 - 1)/8]}{\beta_2(E)}$  ist die Lösung

$$\eta_e = \frac{1}{E} \left( I_p(E) + \sqrt{I_p^2(E) - 4\beta_2(E)E} \right), \quad (2.33)$$

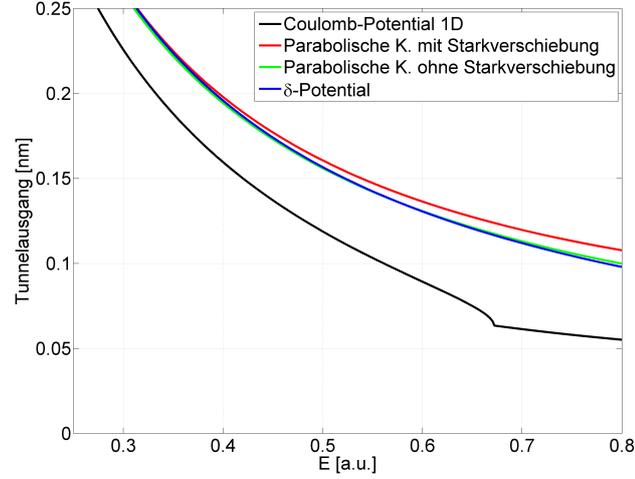


Abbildung 2.3: Position des Tunnelausganges für  $\text{Ne}^+$  in verschiedenen Modellen als Funktion der Feldstärke:  $\delta$ -Potential (siehe Kap. 2.3.1), eindimensionales Coulombpotential (siehe Kap. 2.3.2), Parabolische Koordinaten mit und ohne Starkverschiebung. Für das Modell mit 1D-Coulomb-Potential wird die kritische Feldstärke bei etwa 0.7 a.u. erreicht, sodass die Ionisation nicht mehr über Tunneln geschieht. Interessant ist, dass das einfachste Modell mit dem  $\delta$ -Potential deutlich besser mit dem Ergebnis in parabolischen Koordinaten übereinstimmt als die Berechnung im eindimensionalen Coulombpotential.

bzw. in kartesischen Koordinaten

$$z_e = -\frac{\eta_e}{2} = -\frac{1}{2E} \left( I_p(E) + \sqrt{I_p^2(E) - 4\beta_2(E)E} \right). \quad (2.34)$$

Die Absenkung der Bindungsenergie verursacht eine Verschiebung des Tunnelausganges zu größeren Werten. Die Trajektorie des Elektrons startet weiter vom Atompotential entfernt. Die Position des Tunnelausganges in den verschiedenen Modellen ist im Vergleich der Ergebnisse von Gl. 2.7, Gl. 2.15, Gl. 2.26 und Gl. 2.34 in Abb. 2.3 dargestellt.

## 2.4 Die kritische Feldstärke

Im semiklassischen Modell lautet die Bedingung für quasistatische Tunnelionisation  $\gamma \ll 1$ . Der Parameter  $\gamma$  (siehe Gl. 2.3) kann durch eine Erhöhung der Wellenlänge oder einen Anstieg der Feldstärke minimiert werden. Für sehr hohe Laserintensitäten bzw. elektrische Feldstärken kann jedoch der Potentialberg unter das Bindungspotential abgesenkt werden, sodass das Elektron ohne Tunneln aus dem Atom frei wird (siehe Abb. 2.1). An diesem Punkt ist zu erwarten, dass die Ionisationsrate stark ansteigt. Für eine eindimensionale Betrachtung des effektiven Potentials  $V = -\frac{Z}{r} + Ex$  befindet sich das Maximum der Barriere bei  $x_b = -\sqrt{Z/E}$

und die Energie beträgt  $V(x_b) = -\sqrt{ZE}$ . Damit beträgt die kritische Feldstärke, an der das Maximum des effektiven Potentials unter die Bindungsenergie verschoben wird,

$$E_c = \frac{1}{Z} \left( \frac{I_p}{2} \right)^2. \quad (2.35)$$

Wendet man dieses Ergebnis für das einfachste Atom, das Wasserstoffatom, in dem parabolische Koordinaten uneingeschränkt angewendet werden können, an, liefert Gl. 2.35 das Ergebnis  $E_c=0.0625$  a.u. . Es stellt sich heraus, dass eine Behandlung des Problems in parabolischen Koordinaten einen um mehr als Faktor 2 größeren Wert liefert [22].

In parabolischen Koordinaten bildet das Potential  $V_1$  eine Barriere, deren Maximum bei dem Punkt mit  $\frac{dV}{d\eta} = \frac{Z_1}{2\xi^2} + \frac{1}{4\eta^3} + \frac{E}{8} = 0$  bzw.  $E\xi = -\frac{4Z_1}{\xi} - \frac{2}{\xi^2}$  liegt. Dabei wird nur der Grundzustand betrachtet ( $m=0$ ). Die kritische Feldstärke, an der das Elektron ohne Tunneln direkt über die Barriere aus dem Atompotential fliehen kann, wird über  $V_1(\eta) = -\frac{I_p}{4}$  berechnet. Dies führt auf

$$\xi = -\frac{2}{E} \left( Z_1 + \sqrt{Z_1^2 + \frac{3E}{8}} \right). \quad (2.36)$$

Mit Methoden der Störungsrechnung für die Brechnung der Separationskonstanten folgt für die kritische Feldstärke

$$E_c \approx (\sqrt{2} - 1)I_p^{3/2}. \quad (2.37)$$

Für das Wasserstoffatom beträgt die kritische Feldstärke damit  $E_c=0.1464$  a.u. . Das falsche Ergebnis aus Gl. 2.35 folgt daraus, dass bei der Herleitung die Elektronenbewegung als reine Bewegung in  $z$ -Richtung unabhängig von den anderen Koordinaten betrachtet wurde. Das Problem ist aber in parabolischen Koordinaten separierbar und für das Wasserstoffatom lösbar.

Da die Symmetrie des Wasserstoffatoms für andere Atome gebrochen ist, lässt sich dieses Ergebnis nicht auf Systeme mit mehr als einem Elektron übertragen. In [30] findet sich eine Herleitung der kritischen Feldstärke, die auch für nicht wasserstoffähnliche Atome eine nicht eindimensionale Betrachtung durchführt und die Elektronenkonfiguration berücksichtigt. Das Ergebnis lautet

$$E_c = A(m) \frac{Z^3}{16(n^*)^4} \quad (2.38)$$

mit  $A(m) = \frac{1 - \frac{3}{32} \frac{|m|}{n^*}}{1 - \frac{19}{32} \frac{|m|}{n^*}}$  und der effektiven Hauptquantenzahl  $n^* = Z/\sqrt{2I_p}$ . Diese kritische Feldstärke hängt von der Magnetquantenzahl  $m$  des Elektrons ab. Für  $m=0$  geht dieser Ausdruck in das Resultat der eindimensionalen Betrachtung aus Gl. 2.35 über. Damit stellt diese Formel aus Gl. 2.38 eine Erweiterung der kritischen Feldstärke für Elektronen mit  $m \neq 0$  dar. Da das Atompotential kugelsymmetrisch ist, wird die Energie zwischen der Bewegung

des Elektrons entlang der  $z$ -Achse und der Bewegung, die senkrecht zur  $z$ -Achse stattfindet, aufgeteilt. Zusätzlich drückt für Elektronen mit  $m \neq 0$  der Drehimpuls das Elektron von der  $z$ -Achse weg, sodass ein stärkeres Feld nötig ist, um das Elektron entlang der  $z$ -Achse zu bewegen. Die kritische Feldstärke wird folglich umso größer, je höher  $m$  ist.

Es gibt somit verschiedene Versuche die Feldstärke zu quantifizieren, an der das Elektron direkt über die Potentialbarriere entfliehen kann und die Ionisation nicht mehr durch Tunneln beschrieben werden kann.

Für hohe Feldstärken wird jedoch zusätzlich die Starkverschiebung relevant, die die Energie der Zustände absenkt. Durch eine höhere Bindungsenergie verschiebt sich aufgrund von  $E_c \propto I_p^{3/2}$  die kritische Feldstärke wieder zu noch höheren Feldstärken, bei denen die Ionisation durch Tunneln gerechtfertigt ist. Um dies bei der Berechnung zu berücksichtigen, kann man näherungsweise Gl. 2.29 und Gl. 2.35 kombinieren und erhält

$$\begin{aligned} E_c &= \frac{1}{4Z} \left( I_p(0) + \frac{1}{2}(\alpha_N - \alpha_I)E^2 \right)^2 \\ &= \frac{1}{4Z} \left( I_p(0)^2 + I_p(0)(\alpha_N - \alpha_I)E^2 + \frac{1}{4}(\alpha_N - \alpha_I)^2 E^4 \right). \end{aligned} \quad (2.39)$$

Die Polarisierbarkeit eines Wasserstoffatoms ergibt sich aus Gl. 2.22 zu  $\alpha_N = 9/2$ . Für den Grundzustand des Wasserstoffatoms würde sich entsprechend der Abschätzung in Gl. 2.39 die kritische Feldstärke auf 0.1794 a.u. erhöhen. Für nicht allzu hohe Laserintensitäten werden schon vor Erreichen der kritischen Feldstärke die meisten Atome im Laserfokus durch Tunnelionisation in den höheren Ladungszustand überführt.

Es ist jedoch zu beachten, dass die Berechnung des Starkeffektes aus Gl. 2.29 als Ergebnis der Störungsrechnung nur für kleine Feldstärken gültig ist und damit der Starkeffekt für Feldstärken im Regime der Ionisation nicht durch so einfache Gleichungen beschrieben werden kann.

## Kapitel 3

# Starkfeldphysik mit intensiven Laserpulsen elliptischer Polarisation

### 3.1 Erzeugung und Beschreibung von Laserpulsen hoher Intensität

Zur Untersuchung der Ionisation von Atomen und Ionen sind sehr intensive Laserfelder nötig, deren Feldstärke die Größenordnung der Wechselwirkung zwischen Atom und Elektron erreicht [31]. Um hohe Laserfeldstärken zu erzeugen, muss viel Energie in einer kurzen Zeitspanne konzentriert und auf eine kleine Fläche fokussiert werden. Eine erfolgreiche Methode stellt die „chirped pulse amplification“ (CPA) dar, die 1985 von Strickland und Mourou entwickelt wurde [32]. Zuerst wird der in einem Oszillator erzeugte Laserpuls durch ein dispersives Element, wie ein Beugungsgitterpaar, im Zeitbereich gestreckt und in seine Frequenzkomponenten zerlegt. Der Puls wird damit gecirpt. Die zeitliche Streckung verringert die Spitzenintensität, sodass im zweiten Schritt die Frequenzkomponenten des gecirpten Pulses in einer Serie von Verstärkerstufen verstärkt werden können. Im dritten Schritt wird der verstärkte Puls in einem zweiten Gitterpaar wieder zeitlich komprimiert, wobei ein kurzer Puls mit hoher Spitzenintensität erzeugt wird. Während die ersten CPA-Systeme Nd:glass als Verstärkungsmedium nutzten, werden heute Ti:sapphire Systeme verwendet. Sie ermöglichen aufgrund der großen spektralen Bandbreite sehr kurze Laserpulse bei hoher Repetitionsrate. Das zeitliche und räumliche Profil von Laserpulsen kann durch Gaußfunktionen beschrieben werden [33]. Für einen gaußförmigen Laserpuls beträgt die Leistung als Funktion der Zeit

$$P(t) = P_0 e^{-4 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau}\right)^2}, \quad (3.1)$$

wobei  $\tau$  die Halbwertsbreite (full width at half maximum, FWHM) der Einhüllenden ist. Die

Spitzenleistung  $P_0$  eines Laserpulses hängt von der Pulsenergie  $E_{\text{Puls}}$  ab.

$$P_0 = \frac{E_{\text{Puls}}}{\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-4 \ln 2 (t/\tau)^2} dt} = \sqrt{\frac{4 \ln 2}{\pi}} \frac{E_{\text{Puls}}}{\tau} \approx 0,94 \frac{E_{\text{Puls}}}{\tau} \quad (3.2)$$

Die räumliche Intensitätsverteilung eines Laserstrahls mit der Spitzenintensität  $I_0$  kann ebenfalls durch eine Gaußfunktion beschrieben werden

$$I(\rho, z) = I_0 \left( \frac{w_0}{w(z)} \right)^2 e^{-2 \left( \frac{\rho}{w(z)} \right)^2}. \quad (3.3)$$

Der Strahlradius  $w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left( \frac{z}{z_r} \right)^2}$  nimmt seinen minimalen Wert in der Ebene mit  $z = 0$  an. Der minimale Strahlradius  $w_0$  ist definiert als der Radius, bis zu dem die Amplitude auf  $1/e \approx 36\%$  beziehungsweise die Intensität auf  $1/e^2 \approx 13,5\%$  abgefallen ist. Die Entfernung  $z$  in Propagationsrichtung, an der sich der Maximalwert der Intensität halbiert hat, bestimmt den Rayleighparameter  $z_r = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ . Damit beträgt die maximale Intensität eines gepulsten Laserstrahls im Fokus

$$I_0 \approx \frac{1,88}{\pi} \frac{E_{\text{Puls}}}{w_0^2 \tau}. \quad (3.4)$$

### 3.2 Kontrolle der Polarisation von Licht

Die Richtung des elektrischen Feldvektors  $\vec{E}(x, y, z, t)$  bestimmt die Polarisation von Lichtwellen [33, 34]. Der Feldvektor steht in einem gewöhnlichen Medium tangential zur Wellenfront. Für monochromatisches Licht lassen sich die beiden orthogonalen Komponenten  $\vec{E}_x$  und  $\vec{E}_y$  einer in  $z$ -Richtung propagierenden Welle als harmonische Funktionen beschreiben. Im allgemeinen Fall sind die Amplituden und Phasen der beiden Anteile nicht gleich groß.

Zusätzlich unterscheiden sich in optisch anisotropen Medien (doppelbrechenden Medien) die Phasengeschwindigkeiten  $v_x$  und  $v_y$  der Komponenten  $\vec{E}_x$  und  $\vec{E}_y$ . Das elektrische Feld  $\vec{E}$  kann damit über

$$\vec{E}(x, y, z, t) = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tilde{E}_x(x, y) \cos(\Phi_x(z, t)) \\ \tilde{E}_y(x, y) \cos(\Phi_y(z, t)) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tilde{E}_x(x, y) \cos(\omega(t - \frac{z}{v_x} + \phi_x)) \\ \tilde{E}_y(x, y) \cos(\omega(t - \frac{z}{v_y} + \phi_y)) \end{pmatrix} \quad (3.5)$$

beschrieben werden. Dabei ist  $\omega$  die Kreisfrequenz des Lichtes und  $\Phi_x$  bzw.  $\Phi_y$  die Nullphasenlage der beiden Feldkomponenten. Die Phase  $\Phi_x = \Phi_x(z, t) = \omega(t - \frac{z}{v_x} + \phi_x)$  ist die Phase der  $x$ -Komponente des Feldes in allen Punkten  $(x, y, z)$  der Ebene  $z$  zum Zeitpunkt  $t$ . Der lokale (von  $z$  abhängige) Phasenunterschied  $\delta_\Phi = \Phi_y - \Phi_x$  ist von  $t$  unabhängig. Es ergibt sich:

$$\vec{E}(t) = \begin{pmatrix} \tilde{E}_x \cos(\Phi_x(t)) \\ \tilde{E}_y \cos(\Phi_y(t)) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tilde{E}_x \cos(\Phi_x(t)) \\ \tilde{E}_y \cos(\Phi_x(t) + \delta\Phi) \end{pmatrix}. \quad (3.6)$$

Die Spitze des Feldvektors beschreibt eine ellipsenförmige Bahn in der z-Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung und folgt der Gleichung

$$\left(\frac{E_x(t)}{\tilde{E}_x}\right)^2 + \left(\frac{E_y(t)}{\tilde{E}_y}\right)^2 - 2\left(\frac{E_x(t)}{\tilde{E}_x}\right)\left(\frac{E_y(t)}{\tilde{E}_y}\right)\cos(\delta\Phi) = \sin^2(\delta\Phi). \quad (3.7)$$

Diese Polarisationsellipse besitzt die Halbachsen A und B. Der Winkel  $\alpha$  zeigt die Verdrehung der Hauptachse gegen die  $E_x$ -Achse an. Für das Vorzeichen von  $\alpha$  gilt: Ist für einen der Welle entgegenblickenden Beobachter die große Halbachse gegen den Uhrzeigersinn (mathematisch positiver Drehsinn) aus der x-Achse herausgedreht, so ist  $\alpha$  positiv. Je nach Umlaufsinn der

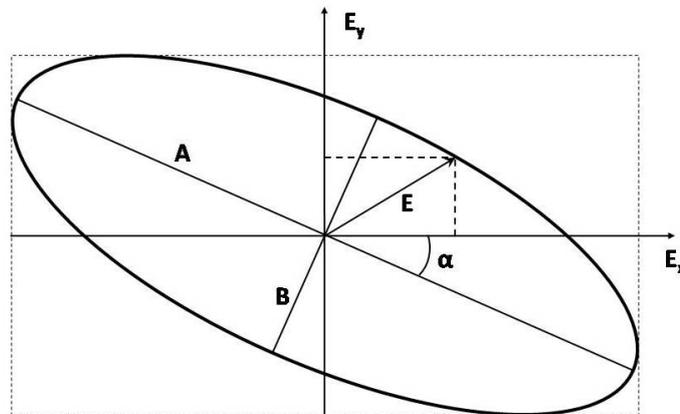


Abbildung 3.1: Polarisationsellipse

Spitze des Vektors  $\vec{E}$  auf der Ellipse mit zunehmender Zeit unterteilt man in linkselliptisch und rechtselliptisch polarisierte Wellen. In diesem Fall gibt es keine vollständig eindeutige Konvention. In Optikbüchern wird eine Welle meist als rechtszirkular bezeichnet, wenn die Feldvektoren für einen festen Zeitpunkt eine rechtsgängige Helix beschreiben (siehe Abb. 3.2). Dies bedeutet, an einem festen Ort rotiert der Feldvektor mit fortschreitender Zeit im Uhrzeigersinn, wenn man der Welle entgegenblickt. Eine linkselliptische Polarisation liegt vor, wenn die Polarisation gegen den Uhrzeigersinn dreht bzw. eine linksgängige Helix ausführt. Nach Gl. 3.6 gilt für linkselliptische Polarisation  $-\pi < \delta\Phi < 0$  und für rechtselliptische  $0 < \delta\Phi < \pi$ . In der Literatur der Ingenieurwissenschaften findet man teilweise die entgegengesetzte Bezeichnung.

Abhängig vom Wert von  $\delta\Phi$  gibt es für den in Gl. 3.7 beschriebenen allgemeinen Fall der elliptischen Polarisation zwei Sonderfälle.

Für  $\delta\Phi = \pm\frac{\pi}{2}$  geht Gl. 3.7 in  $E_x^2 + E_y^2 = \tilde{E}_x^2$  über. Der Vektor der Feldstärke beschreibt dann einen Kreis und man spricht von zirkularer Polarisation. Für  $\delta\Phi = -\frac{\pi}{2}$  liegt linkszirkulare

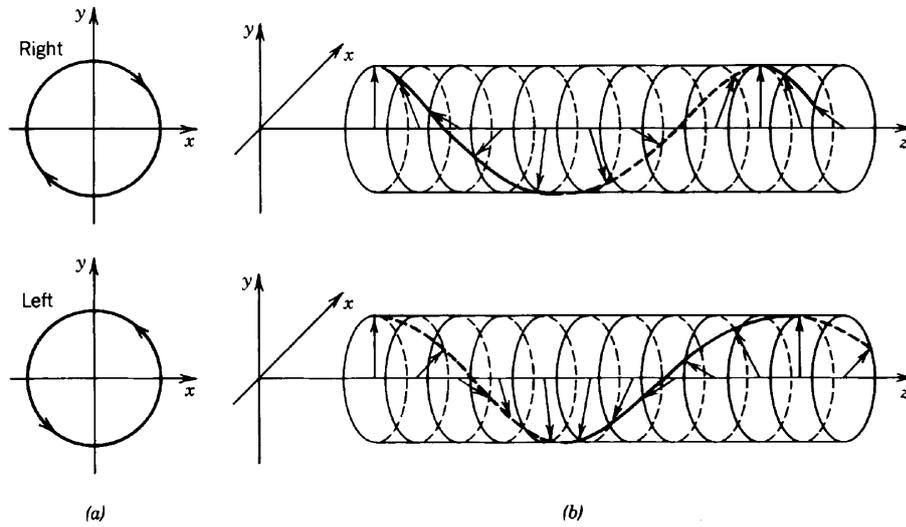


Abbildung 3.2: Verlauf des Feldvektors für eine rechts- und linkszirkular polarisierte Welle an einem festen Ort (a) und zu einer festen Zeit (b). Aufgrund des Funktionsargumentes  $t - z/v$  in Gl. 3.5 zeigen a) und b) einen entgegengesetzten Drehsinn [33].

und für  $\delta\Phi = +\frac{\pi}{2}$  rechtszirkulare Polarisation vor. Für  $\delta\Phi = 0$  oder  $\delta\Phi = \pi$  gilt  $\tan(\alpha) = \pm \frac{\tilde{E}_y}{\tilde{E}_x}$ . Dies beschreibt eine um den Winkel  $\alpha$  gegen die  $x$ -Achse verdrehte Gerade im  $E_x$ - $E_y$ -Koordinatensystem. In diesem Fall ist die Welle linear polarisiert.

Der Verlauf des elektrischen Feldes  $\vec{E}$  lässt sich mit Gleichung 3.6 beschreiben. Dies wird genutzt, um den Jones-Vektor  $\vec{J}$  über die Amplituden  $\tilde{E}_x$  und  $\tilde{E}_y$  sowie der Phasendifferenz  $\delta\Phi$  als

$$\vec{J} = \begin{pmatrix} \tilde{E}_x \\ \tilde{E}_y \cdot e^{i\delta\Phi} \end{pmatrix} \quad (3.8)$$

zu definieren. Das Amplitudenverhältnis  $\tilde{E}_x/\tilde{E}_y$  und die Phasendifferenz  $\delta\Phi$  legen den Polarisationszustand einer Welle eindeutig fest. Für lineare Polarisation hat der Jones-Vektor folgende Gestalt

$$\vec{J} = \tilde{E}_x \begin{pmatrix} 1 \\ \tan(\alpha) \end{pmatrix} (\alpha \neq 90^\circ). \quad (3.9)$$

Zirkulare Polarisation wird durch

$$\vec{J} = \tilde{E}_x \begin{pmatrix} 1 \\ \pm i \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

dargestellt ( $+i$ : rechtszirkular,  $-i$ : linkszirkular).

Mit Hilfe der Jones-Vektoren kann die Wirkung von optischen Bauelementen auf das Amplitudenverhältnis  $\tilde{E}_x/\tilde{E}_y$  und die Phasendifferenz  $\delta\Phi$  des sie durchdringenden Lichtes durch

eine bauelementspezifische  $(2 \times 2)$ -Matrix  $M$  mathematisch beschrieben werden. Den Polarisationszustand des Lichtes nach dem Bauelement  $\vec{J}_{\text{ein}}$  erhält man durch Multiplikation des eingehenden Polarisationszustandes  $\vec{J}_{\text{aus}}$  mit der Matrix  $M$ .

$$\vec{J}_{\text{aus}} = M \cdot \vec{J}_{\text{ein}} \quad (3.11)$$

So wird ein Linearpolarisator, der um den Winkel  $\alpha$  gegen die x-Achse gedreht ist, durch folgende Jones-Matrix beschrieben:

$$M_{\text{Polarisator}} = \begin{pmatrix} \cos^2(\alpha) & \sin(\alpha)\cos(\alpha) \\ \sin(\alpha)\cos(\alpha) & \sin^2(\alpha) \end{pmatrix}. \quad (3.12)$$

Nach dem Polarisator ist das Licht linear entlang der Richtung des Polarisators polarisiert. Wenn das Licht zuvor nicht schon entlang der Polarisatorrichtung polarisiert war, reduziert der Polarisator zusätzlich die Intensität.

Bauelemente, in denen die Phasengeschwindigkeit von der Orientierung der Polarisation abhängt, bezeichnet man als Retarder. Es gibt zwei senkrecht zueinander stehende Vorzugsachsen, die sogenannten Hauptachsen. Einfallendes Licht wird in die beiden Komponenten zerlegt, die in den Hauptachsenrichtungen linear sind. Die beiden Anteile erfahren unterschiedliche Phasengeschwindigkeiten  $v_1$  bzw.  $v_2$ . Die Hauptachse, bei der das Licht die höhere Phasengeschwindigkeit hat, wird als schnelle Achse bezeichnet. Aufgrund der Differenz in den Phasengeschwindigkeiten erfahren die beiden Anteile des Lichtes nach dem Durchgang durch das Bauelement eine zusätzliche Phasendifferenz  $\delta\Phi_{\text{aus}} = \delta\Phi_{\text{ein}} + \omega z(1/v_2 - 1/v_1)$ . Diese Phasendifferenz kann den Polarisationszustand verändern. Die Intensität bleibt jedoch erhalten.

Bauelemente, die einen Phasenunterschied von  $\pi/2$  erzeugen, bezeichnet man als  $\lambda/4$ -Platten. Die Jones-Matrix einer solchen  $\lambda/4$ -Platte, deren schnelle Achse in x-Richtung zeigt, hat die Form

$$M_{\lambda/4} = \begin{pmatrix} e^{i\pi/2} & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad (3.13)$$

Trifft linear unter  $45^\circ$  polarisiertes Licht auf diese Platte, berechnet sich der Jones-Vektor des auslaufenden Lichtes zu

$$\vec{J}_{\text{aus}} = M_{\lambda/4} \cdot \vec{J}_{\text{ein}} = M_{\lambda/4} \cdot \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{i\pi/2} \\ 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} i \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (3.14)$$

Damit ist das Licht nach der  $\lambda/4$ -Platte linkszirkular polarisiert. Trifft das einfallende linear polarisierte Licht nicht unter  $45^\circ$  auf die Wellenplatte, wird elliptisches Licht erzeugt. Stimmt

die Richtung der linearen Eingangspolarisation mit der Richtung der schnellen oder langsamen Achse der Wellenplatte überein, ändert sich der Polarisationszustand nicht.

Für eine beliebige Orientierung  $\alpha$  der  $\lambda/4$ -Platte erhält man durch Koordinatentransformation  $M' = R(-\alpha)MR(\alpha)$  der Matrix in Gl. 3.13 folgende Matrix für eine gedrehte  $\lambda/4$ -Platte

$$M_{\lambda/4,\alpha} = \begin{pmatrix} 1 - i \cos(2\alpha) & -i \sin(2\alpha) \\ -i \sin(2\alpha) & 1 + i \cos(2\alpha) \end{pmatrix}, \quad (3.15)$$

wobei  $R(\alpha)$  die Drehmatrix für die Drehung um den Winkel  $\alpha$  ist. Aus Gl. 3.7 lassen sich Be-

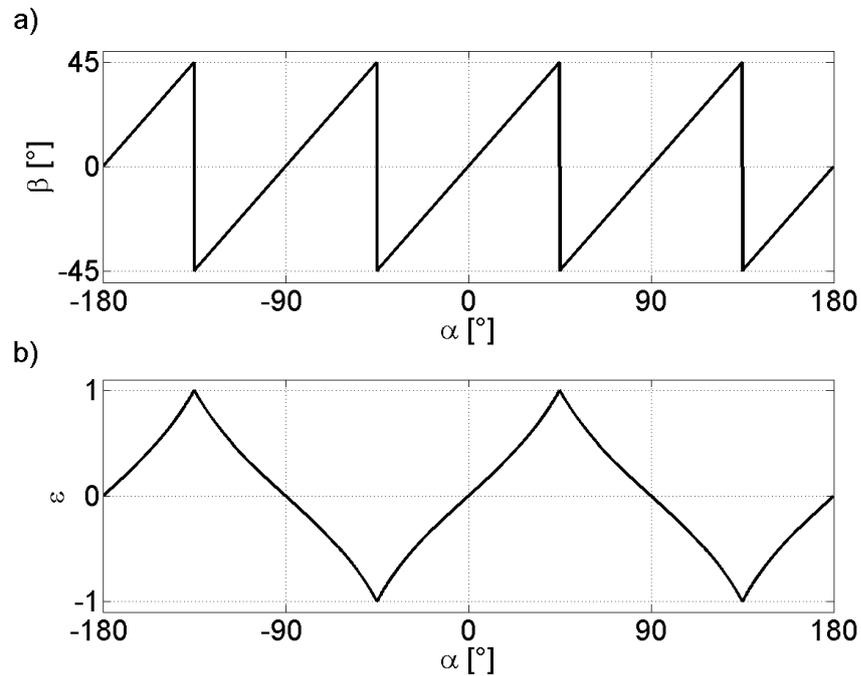


Abbildung 3.3: a) Berechnung des Verdrehungswinkels  $\beta$  und b) der Elliptizität für verschiedene Orientierungswinkel  $\alpha$  einer  $\lambda/4$ -Platte nach Einfall einer linear polarisierten monochromatischen Welle.

ziehungen ableiten, um aus den ermittelten Jones-Vektoren die Ausrichtung der Hauptachse der Polarisation  $\beta$

$$\beta = \frac{1}{2} \arctan \left( \frac{2\tilde{E}_x \tilde{E}_y \cos(\delta\Phi)}{\tilde{E}_x^2 - \tilde{E}_y^2} \right), \quad (3.16)$$

sowie den Wert der Elliptizität  $\epsilon$  zu bestimmen.

$$\epsilon = \text{sign}(\Theta) \cdot \frac{B}{A} = \tan(|\theta|) \quad (3.17)$$

Dabei ist  $\sin(2\Theta) = \arctan \left( \frac{2\tilde{E}_x \tilde{E}_y \cos(\delta\Phi)}{\tilde{E}_x^2 + \tilde{E}_y^2} \right)$ . Für  $\epsilon > 0$  ist die Welle rechtselliptisch und für  $\epsilon < 0$  linkselliptisch polarisiert. Mit diesen Gleichungen lässt sich die Wirkung auf die

Ausrichtung der Polarisationsellipse und die Elliptizität einer  $\lambda/4$ -Platte leicht berechnen (siehe Fig. 3.3).

### 3.3 Trajektorien in elliptisch polarisierten Laserpulsen

Eine sehr leistungsfähige Methode, den zeitlichen Ablauf der Ionisation von in einem Atom gebundenen Elektron durch ein starkes Laserfeld zu untersuchen, ist die Nutzung elliptisch polarisierter Laserpulse [13, 17]. Die Referenz zur Bestimmung der Zeit stellt der rotierende Feldvektor der elliptischen Polarisation dar.

In den letzten Jahren wurden eine Reihe von Experimenten durchgeführt, die auf dieser Technik basieren. Maharjan *et al.* untersuchten die Impulsverteilung nach Doppelionisation mit elliptischer Polarisation von Argon- und Neonatome [16]. Die Bezeichnung „Attoclock“ wurde von Eckle *et al.* bei der Ionisation von Helium mit elliptisch polarisierten Laserpulsen [35] geprägt. Diese Methode wurde von Pfeiffer *et al.* angewandt, um über den Vergleich der experimentellen Ergebnisse der Einfachionisation von Argon und Helium mit verschiedenen theoretischen Modellen Rückschlüsse auf die Tunnelgeometrie und den Einfluss des Coulombpotentials des verbliebenen Atoms auf die Elektrontrajektorie zu ziehen [8]. Um diese experimentellen Ergebnisse besser verstehen zu können, wurde das TIPIS-Modell entwickelt. Weiterhin wurde der zeitlichen Ablauf der Doppelionisation in Argonatomen untersucht und festgestellt, dass der Ionisationszeitpunkt des ersten Elektrons gut mit den theoretischen Vorhersagen übereinstimmt. Allerdings findet die Emission des zweiten Elektrons früher statt als erwartet [10]. Dieser Zusammenhang zwischen den Ionisationszeitpunkten und Korrelationen in der Richtung der Elektronenemission legt nahe, dass das gebräuchliche Bild der sequentiellen Doppelionisation, dass die Elektronen unabhängig voneinander ionisiert werden, angezweifelt werden muss. Diese Experimente zeigten, welche Möglichkeiten die Ionisation mit elliptischer Polarisation bei der Untersuchung der Starkfeldionisation bieten.

Die Technik basiert auf dem in Kap. 2 erläuterten semiklassischen Modell [17]. Es betrachtet den Ionisationsvorgang in zwei Schritten. Im ersten Schritt tunnelt das Elektron durch die Potentialbarriere, die durch Überlagerung des Atompotentials mit dem Laserfeld entsteht, ins Kontinuum. Die anschließende Bewegung des freien Elektrons wird mit einer klassischen Trajektorie im Laserfeld in Kombination mit dem Potential des verbliebenen Ions beschrieben. Wie in Kap. 2 ausführlich erläutert, folgt die Ionisationsrate der elektrischen Feldstärke, im Gegensatz zum Driftimpuls des Elektrons, der durch das Vektorpotential zum Zeitpunkt der Ionisation bestimmt wird. Da elektrisches Feld und Vektorpotential um  $90^\circ$  phasenverschoben sind, ergibt sich für lineare Polarisation der Driftimpuls des Elektrons eine Verteilung um Null.

Das ändert sich für die Ionisation mit elliptisch polarisierten Laserpulsen.

$$\vec{E}(t) = E_0(t) \frac{1}{\sqrt{1 - \epsilon^2}} \begin{pmatrix} \cos(\omega t + \phi_0) \\ \epsilon \sin(\omega t + \phi_0) \end{pmatrix} \quad (3.18)$$

Dabei beschreibt  $E_0(t)$  die zeitliche Einhüllende des Laserpulses. Für  $\epsilon > 0$  rotiert der elektrische Feldvektor, da er sich aus der Superposition der Komponente in  $E_x$ - und  $E_y$ -Richtung ergibt, die zueinander phasenverschoben sind (siehe Kap. 3.2). Damit sinkt der Betrag der Feldstärke während einer Oszillation nicht auf Null ab. Das gleiche gilt für das korrespondierende Vektorpotential.

$$\vec{A}(t) = \frac{E_0(t)}{\omega} \frac{1}{\sqrt{1 + \epsilon^2}} \begin{pmatrix} -\sin(\omega t + \phi_0) \\ \epsilon \cos(\omega t + \phi_0) \end{pmatrix} \quad (3.19)$$

Das Elektron wird aufgrund der Abhängigkeit der Tunnelrate von der Feldstärke mit der höchsten Wahrscheinlichkeit an den Maxima der Feldstärke ionisiert, wenn die Feldstärke den Wert der großen Halbachse der Polarisation einnimmt. Aufgrund der Phasenverschiebung zwischen den beiden Feldkomponenten und der Verschiebung zwischen Feld und Vektorpotential erhält das Elektron dann einen Driftimpuls, der proportional zur kleinen Halbachse der Ellipse ist, die das Vektorpotential analog zur Polarisation beschreibt. Ionisiert das Elektron am Feldmaximum zum Zeitpunkt  $t_0$ , dann ist der Impuls des Elektrons

$$\vec{p} = \vec{A}(t_0) = \frac{E_0(t_0)}{\omega} \frac{1}{\sqrt{1 + \epsilon^2}} \begin{pmatrix} -\sin(\omega t_0) \\ \epsilon \cos(\omega t_0) \end{pmatrix} \approx \frac{E_0(t_0)}{\omega} \frac{1}{\sqrt{1 + \epsilon^2}} \begin{pmatrix} 0 \\ \pm\epsilon \end{pmatrix}. \quad (3.20)$$

Durch die bekannte Relation zwischen Feld und Vektorpotential kann damit auch die Feldstärke zum Ionisationszeitpunkt bestimmt werden. Dies ist der Grund dafür, dass die Elektronenimpulse der direkten Elektronen, die durch Ionisation mit elliptischer Polarisation entstanden sind, zusätzliche Informationen über den Ionisationsprozess zur Verfügung stellen, die mit linearer Polarisation nicht zugänglich sind.

Das elektrische Feld, genauer das Vektorpotential, kann ein positives oder negatives Vorzeichen haben, sodass die Emission der Elektronen in positive oder negative Richtung möglich ist. Es bilden sich nach der Ionisation mit elliptisch polarisierten Laserpulsen die charakteristischen halbmondförmigen Impulsverteilungen der Elektronen in der Laserpolarisationsebene aus (siehe Abb. 3.5). Die zwei Maxima sind für Laserpulse, bei denen die Phase zwischen der Trägerwelle und der Einhüllenden (engl. Carrier-Envelope-Phase, CEP) nicht stabilisiert ist, punktsymmetrisch zum Koordinatenursprung und liegen entlang der kleinen Halbachse der Polarisation bei  $p = \pm\epsilon E(t_0)/(\omega\sqrt{1 + \epsilon^2})$ .

Mit der Messung der Position der Maxima  $p$  wird der Driftimpuls des Elektrons ermittelt. Der Driftimpuls ist, wie oben beschrieben, abhängig vom Ionisationszeitpunkt, wobei hier als Ionisationszeitpunkt der Zeitpunkt des Startes der Elektrontrajektorie bezeichnet wird. Damit ist die Feldstärke zum Zeitpunkt der Ionisation bekannt und beträgt  $E(t_0) = p\omega\sqrt{1 + \epsilon^2}/\epsilon$ . Mit der Kenntnis von  $E(t_0)$  kann in der Einhüllenden des Laserpulses die korrespondierende Zeit bestimmt werden, die der Ionisationszeit entspricht. Dazu wird angenommen, dass das Elektron in der ansteigenden Flanke des Laserpulses ionisiert wird (siehe Abb. 3.4). Das Ermitteln der Ionisationszeit unter der Einhüllenden aus dem Betrag des im Laserfeld übertragenen Impulses wird als „hour hand“, als der „Stundenzeiger“ der Attoclock bezeichnet, da es nur eine Zeitangabe darüber ermöglicht, in welchem Zyklus das Elektron emittiert wurde.

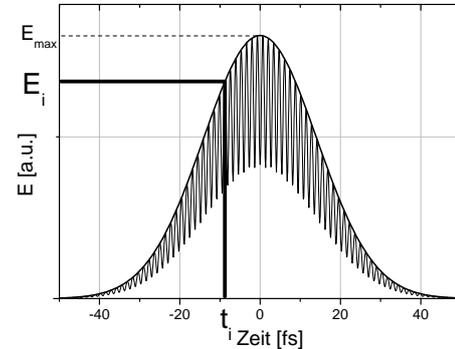


Abbildung 3.4: Bestimmung der Ionisationszeit  $t_i$  in der Einhüllenden des Laserpulses nach Bestimmung der Feldstärke  $E_i$  aus dem übertragenen Impuls  $p_i$  des Elektrons oder Ions

Der Winkel der Emission des Elektrons ist die Grundlage für die genauere Messung der Ionisationszeit innerhalb eines Zyklus, die die „minute hand“ der Attoclock darstellt. Da für elliptische Polarisation der elektrische Feldvektor genauso wie der Vektor des Vektorpotentials einmal um  $360^\circ$  rotiert, wird die Phase des Laserfeldes zum Ionisationszeitpunkt in dem Winkel, unter dem das Elektron emittiert wurde, abgebildet. Im einfachsten klassischen Modell (siehe Kap. 2.3.1), auch „Simple man“-Modell genannt, entspricht für ein zirkulares Feld der Emissionswinkel genau der Phase des Laserfeldes zum Ionisationszeitpunkt innerhalb einer optischen Periode. Für den allgemeineren Fall der elliptischen Polarisation muss der Einfluss der Elliptizität bei der Berechnung des Winkels berücksichtigt werden (siehe Kap. 6.2). Für das „Simple man“-Modell wäre der Schwerpunkt der Verteilung aller Emissionswinkel exakt entlang der kleinen Polarisationsachse zu erwarten. Im Experiment wurde jedoch ein Winkeloffset  $\Theta$ , eine Verdrehung der Maxima der Zählrate gegenüber der Polarisationsellipse, beobachtet. Die Ergebnisse von Pfeiffer *et al.* zeigen, dass diese Abweichung von diesem Modell weniger als Verschiebung der Ionisationszeit, sondern als Resultat einer Wechselwirkung zwischen Elektron und Ion zu verstehen ist. Die Ergebnisse können unter Berücksichtigung der Coulomb-Korrektur durch Simulationen auf Basis des TIPIS-Modells reproduziert werden.

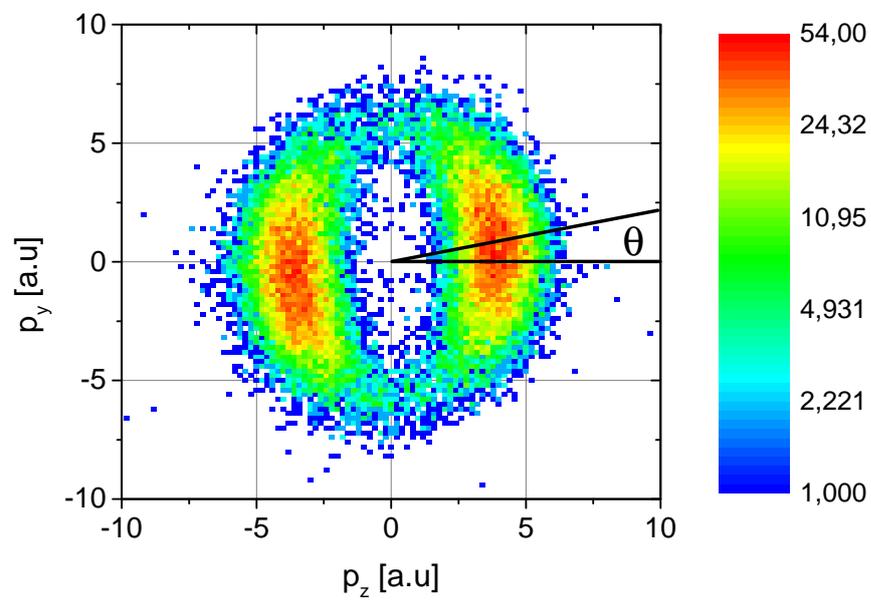


Abbildung 3.5: Impulsspektrum nach Ionisation mit elliptischer Polarisation (Elliptizität  $\epsilon=0.74$ ). Die Verdrehung  $\Theta$  der Maxima der Zählrate gegenüber der Polarisationsellipse ist gekennzeichnet.

## Kapitel 4

# Ionenstrahlapparatur und Lasersystem

### 4.1 Überblick

Ziel der Experimente war es, die vollständigen 3D-Impulsverteilungen von Ionen nach der Photoionisation im Feld eines intensiven Laserpulses zu vermessen. Bei der Untersuchung der Photoionisation von Atomen (oder Ionen) stellt das gemessene Impulsspektrum das Spektrum von Rückstoßimpulsen der Ionen nach der Ionisation dar und ist infolge der Impulserhaltung im Fall der Einzelionisation bis auf das Vorzeichen identisch mit dem Impulsspektrum der ionisierten Elektronen.

Messungen dieser Art wurden schon unter Nutzung eines COLTRIMS-Aufbaus (Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy) durchgeführt [10, 16, 36]. Dabei werden Atome aus einem kalten Gasjet von einem Laserfeld ionisiert, die ionisierten Ionen und Elektronen durch elektrische und magnetische Felder auf Trajektorien zu gegenüberliegenden Detektoren gelenkt und in Koinzidenz registriert [37].

In der vorliegenden Arbeit wurde ein anderer Ansatz verfolgt. Als Target dienen Ionen aus einem transversal kalten Ionenstrahl hoher kinetischer Energie. Diese werden durch das elektrische Feld eines intensiven Laserpulses zu einem höheren Ladungszustand ionisiert und treffen, aufgrund ihrer Anfangsgeschwindigkeit, auf einen zeit- und ortsempfindlichen Detektor. Die Anfangsgeschwindigkeit ermöglicht es, durch elektrostatische longitudinale und transversale Felder die unterschiedlichen Ionen in Ort und Zeit zu trennen. Diese Technik zur Abbildung des dreidimensionalen Impulses wurde für die Untersuchung der Dissoziation von einfachen Molekülen wie  $\text{H}_2^+$  beschrieben [38, 39] und besitzt Ähnlichkeiten zu der oben

erwähnten COLTRIMS-Methode.

Im Vergleich zu COLTRIMS-Messungen können ausschließlich die Ionen detektiert und daher keine Ion-Elektronen-Koinzidenzen ausgenutzt werden, die für die Untersuchung sequentieller und nichtsequentieller Mehrfachionisation interessant sind. Diese COLTRIMS-Koinzidenzmessungen von Elektronen und Ionen sind messtechnisch sehr aufwendig und nicht in der Lage, alle Emissionsrichtungen der Elektronen in der Mehrfachionisation zu registrieren, sodass nicht der vollständige Ereignisraum zugänglich ist [10]. Da Ionen- und Elektronenimpulsspektren aufgrund der Impulserhaltung den fast identischen Informationsgehalt [13] aufweisen, kann die Messung der Ionen ausreichen, um Informationen über den Ionisationsprozess zu gewinnen. Im Fall der sequentiellen Mehrfachionisation ist es möglich, den Impuls der Elektronen, die in den Einzelionisationschritten emittiert wurden, zu rekonstruieren (siehe Kap. 6.4).

Die Verwendung eines Ionenstrahles erlaubt es, von atomaren Ionen verschiedener Ladungszustände in der Elektronenkonfiguration des Grundzustandes zu starten. Da Ionen ein höheres Ionisationspotential besitzen, sind für die Ionisation höhere Intensitäten notwendig. Damit nehmen die Ionen im Laserfeld einen größeren Impuls auf und es wird eine höhere relative Auflösung erreicht als bei der Ionisation von neutralen Atomen des selben Elements.

Die Messung der Ionen ermöglicht eine hohe Impulsauflösung und die direkte Impulsmessung im vollem 4-Pi-Raumwinkel. Es werden keine Inversionsalgorithmen benötigt, wie sie bei der Nutzung der VMI-Technik (Velocity Map Imaging) erforderlich sind [40].

Weiterhin ermöglicht die Ionisation von Ionen durch die Beziehung zwischen Ladungszustand und Ionisationspotential den Zugang zu einem Regime, indem der Keldysh-Parameter niedriger ist und der Ionisationsprozess besser als Tunnelprozess beschrieben werden kann (siehe Kap. 2.2 sowie Kap. 7.1).

Zusätzlich ist es möglich, durch gezielte Auswahl des Ladungszustandes im Ionenstrahl einzelne Ionisationsschritte zu isolieren und Multielektroneneffekte im Prozess der sequentiellen Mehrfachionisation zu untersuchen. Es kann z.B. auch ein Ionenstrahl von  $\text{He}^+$ -Ionen erzeugt werden. Da das  $\text{He}^+$ -Ion nur ein einzelnes Elektron besitzt, stellt dieses Ion ein sehr interessantes System dar, um die verschiedenen semiklassischen Modelle der Starkfeldionisation mit einem einfachen Experiment zu vergleichen. Dabei ist das  $\text{He}^+$ -Ion praktisch eines der wenigen Systeme, für das zusätzlich auch exakte quantenmechanische Berechnungen möglich sind.

Der experimentelle Aufbau zur Ionenstrahlanlage setzt sich aus vier Teilen zusammen: (i) die Ionenquelle und die Ionenstrahloptiken, (ii) das Lasersystem und die Laseroptik (iii) die Interaktionskammer und (iv) der zeit- und positionsempfindliche Detektor.

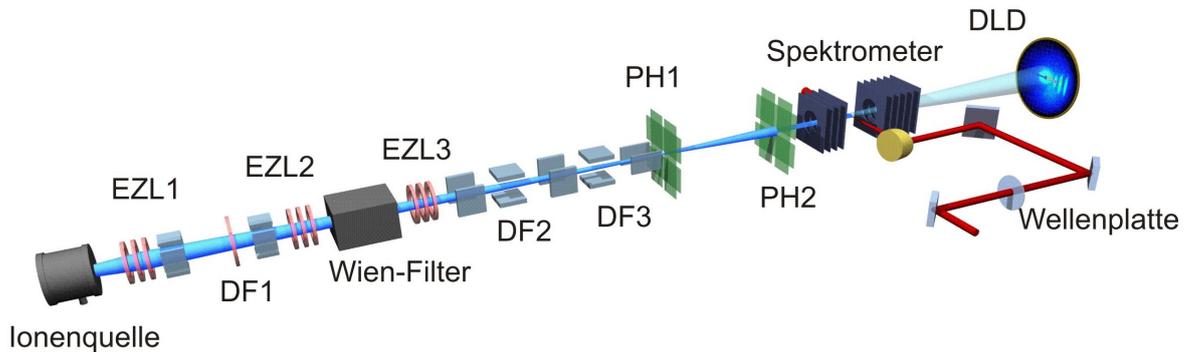


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der Ionenstrahlanlage mit Ionenquelle (Duoplasmatron), den drei elektrostatischen Einzellinsen (EZL1-3), Wienfilter, dem Defektorsystem (DF1-3), Pinholes (PH1-2), Spektrometer, Laserfokussieroptik und Wellenplatte sowie Delayline-Detektor (DLD).

## 4.2 Erzeugung eines Ionenstrahls

Zur Erzeugung des Ionenstrahls kommt eine Duoplasmatron-Ionenquelle zum Einsatz. Durch eine Hohlkathodenentladung in der Ionenquelle wird ein kontinuierlicher Ionenstrom ausgebildet (Genauere Informationen in Bachelorarbeit [41]). Im Duoplasmatron können Ionenströme von einfach geladene atomaren Ionen von Edelgasatomen wie He, Ne, Ar, Xe und molekulare Ionen wie  $\text{H}_2^+$ ,  $\text{HD}^+$ ,  $\text{D}_2^+$  oder  $\text{Ar}_2^+$  erzeugt werden [42, 43]. Dabei ist auch die Erzeugung der nächst höheren Ladungszustände möglich, wobei die Ionenstromstärke der höher geladenen Ionen stark abnimmt. Aus diesem Grund gelang es bisher, infolge der geringen Ionendichte in der Überlagerungszone von Laser und Ionenstrahl, nicht, mit höher als einfach geladenen Ionen erfolgreiche Ionisationsexperimente durchzuführen. Andere Ionenquellen wie z.B. eine EBIT (Electron Beam Ion Trap) erzeugen zwar nicht so hohe Ionenströme niedrig geladener Ionen, sind dafür aber besser geeignet, auch höhere Ladungszustände zu generieren.

Die gesamte Ionenstrahlanlage besteht aus mehreren differentiell gepumpten UHV-Kammern. In der Ionenquelle ist der Druck vergleichsweise hoch und muss auf ein sehr gutes UHV von  $10^{-10}$  mbar in der Detektorkammer abgesenkt werden, um das Rauschsignal auf dem Detektor zu reduzieren. Weiterhin muss das Aufkommen von Restgasatomen auf der gesamten Flugstrecke des Ionenstrahls minimiert werden, um die Entstehung eines neutralen Atomstrahls parallel zum Ionenstrahl zu reduzieren. Diese neutralen Teilchen entstehen durch Kollision der schnellen Ionen des Ionenstrahls mit Restgasatomen, was Elektroneneinfangprozesse der geladenen Ionen hervorruft. Jede Kammer wird durch ölfreie magnetisch gelagerte Turbopumpen gepumpt und zusätzlich gegebenenfalls bei  $120^\circ$  ausgeheizt. Im Betrieb erreicht der Druck in der Duoplasmatron-Ionenquelle nach einer Startphase im Gleichgewicht  $10^{-2}$  mbar. In der

Kammer nach der Extraktion der Ionen aus der Hohlkathodenentladung herrscht aufgrund einer differentiellen Pumpstufe ein Druck von ca.  $10^{-8}$  mbar. Der Druck in der Ionenquelle muss zum Zünden der Hohlkathodenentladung um circa eine Größenordnung erhöht werden. Nach dem Start der Entladung wird nur ein geringer Ionenstrom emittiert. Erst durch Absenken der Gaszufuhr wird das Plasma der Gasentladung in Richtung der Emissionsöffnung verschoben und es können höhere Ionenströme extrahiert werden. Je niedriger der Druck, desto höher wird der extrahierbare Ionenstrom, aber umso größer ist die Wahrscheinlichkeit für Überschläge in der Entladungskammer sowie für den Abbruch der Entladung. Vor allem nach der Startphase treten Überschläge auf, die nicht zum Stopp der Entladung führen, aber eine Veränderung der Ionenstrahlposition zur Folge haben. Um ein Ionisationsexperiment zu starten, muss ein stabiler Zustand der Ionenquelle erreicht werden, der sich nach etwa 10-30 Stunden einstellt (siehe Abb. 4.2). Nach einer Betriebsdauer von etwa 200 Stunden bzw. nach der Dauer einer typischen Messreihe muss die Hohlkathode in der Entladungskammer ersetzt werden. Die Öffnung der Hohlkathode wird durch die im Feld der Kathodenspannung beschleunigten Ionen beschädigt. Damit ist die Kathode nicht mehr für einen neuen Start der Entladung geeignet. Die Ionen werden aus dem Plasma in der Entladungskammer

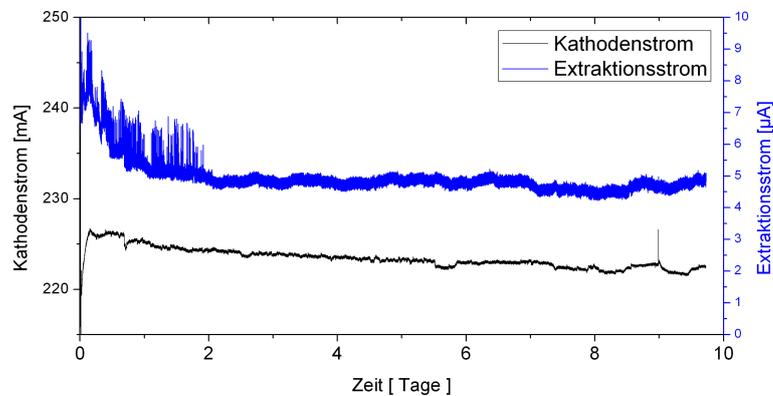


Abbildung 4.2: Verlauf der Betriebsparameter der Duoplasmatron-Ionenquelle Kathodenstrom und Extraktionsstrom während der Messung. Der Kathodenstrom ist der Stromfluss zwischen Anode und Kathode. Sein Verlauf gibt Aufschluss über die Stabilität der Entladung in der Ionenquelle. Der Extraktionsstrom ist ein Maß für den Strom von Ionen, die durch die Emissionsapertur in der Anode extrahiert werden können. Deutlich erkennbar sind die Aufwärmphase und die Häufigkeit der Peaks im Verlauf des Extraktionsstromes.

durch eine Emissionsapertur in der Anode (Durchmesser von  $200 \mu\text{m}$ ) extrahiert und auf eine Energie zwischen 4 und 10 kV (typischerweise 8kV) beschleunigt. Nach der Extraktion wird der Ionenstrahl durch ein System von drei elektrostatischen Einzellinsen kollimiert, um einen Ionenstrahl geringer Divergenz und hoher Ionendichte zu formen. Die Positionierung des Io-

nenstrahls geschieht über drei, an unterschiedlichen Positionen in der Beamline befindlichen Systemen von Deflektoren, die aus jeweils zwei senkrecht zueinander ausgerichteten Paaren von Deflektorplatten bestehen.

Die verschiedenen von der Quelle erzeugten Ionenspezies und Ladungszustände werden mit Hilfe eines Wienfilters (Dreerbit: Massen und Ladungsauflösung  $5\text{keV} > 20$ ) mit einer Apertur von 1 mm selektiert. Um einen transversal kalten Ionenstrom homogener Dichte zu erhalten, dienen zwei Blendensysteme aus jeweils vier verschiebbaren Platten. Der Abstand der beiden Blendensysteme beträgt 132 cm. Mit Hilfe der Blenden kann die Strahlform sowie der Strahldurchmesser eingestellt werden. Damit kann über Verschieben der Blenden der Gesamtionenstrom reguliert und das Streuen von Ionen vermindert werden, was nötig ist, um eine Überlastung sowie Rauschen auf dem Detektor zu verhindern.

Zur korrekten Positionierung des Ionenstrahls relativ zur Interaktionszone sowie in Bezug auf den Detektor, wird die Abbildung des Ionenstrahls auf einem Phosphorschirm genutzt. Dieser wird vor den Detektor gefahren und schützt diesen im Justageprozess vor zu hohen Ionenströmen. Die Größe des Ionenstrahles kann über den eingestellten Abstand der Blenden sowie über die Abbildung auf dem Phosphorschirm abgeschätzt werden und beträgt typischerweise  $400 \times 400 \mu\text{m}^2$ .

### 4.3 Laser und Laseroptik

Für das Experiment wird ein Ti:Sa chirped-pulse Verstärkungssystem genutzt. Der Ausgang aus einer ersten Stufe eines 25-fs 1-mJ 4-kHz Laserssystems (Femtolasers) mit einer Repetitionsrate von 4 kHz ist kombiniert mit einer anschließenden 30-fs, 10-mJ, 1-kHz Multipass Verstärkungsstufe (Thales).

Für das Experiment ist eine genaue Kenntnis der Pulslänge wichtig. Die Pulslänge wurde mit einem SPIDER (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction) gemessen und mit dem Gitterkompressor optimiert. Die minimal erreichbare Pulslänge an der Targetkammer liegt bei  $37 \pm 3$  fs. Das aus dem Spektrum ermittelte Fourierlimit beträgt zum Vergleich 26 fs (siehe Abb. 4.3).

Zur Fokussierung des Laserstrahls in die Interaktionskammer kam eine  $90^\circ$ -off-axis-Parabel mit einer Fokusslänge von 150 mm zum Einsatz. Die Parabel ist in alle drei Raumrichtungen verfahrbar und rotierbar sowie in zwei Richtungen verkippt. Die Eigenschaften des Fokus hängen sehr empfindlich von der Justage der Parabel ab. Die Fokusgröße und -form wurden mit einer CCD-Kamera (WinCam) untersucht, auf die der Laserfokus mit Hilfe eines Klappspiegels abgebildet wurde. Der minimal erreichbare Strahldurchmesser wurde mit der

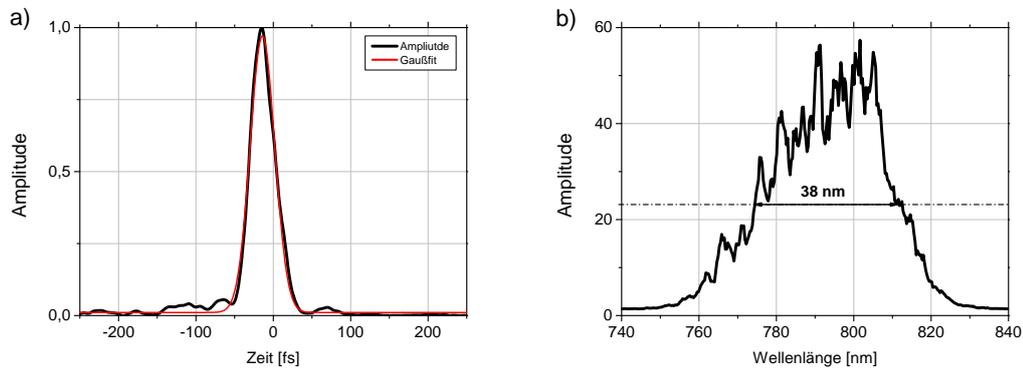


Abbildung 4.3: a) Bestimmung der Pulslänge mit Gaußfit mit FWHM-Breite von 37 fs. b) Spektrum mit Halbwertsbreite von 38 nm.

Abbildung auf eine CCD-Kamera bestimmt (siehe Abb. 4.4). Die Kamera besitzt eine Pixelgröße von  $4,545 \mu\text{m}$ . Der minimal erreichbare Strahldurchmesser beträgt  $15 \pm 2 \mu\text{m}$  und damit nur einige Pixel auf der CCD. Verluste an Transmissions- und Reflexionsoptiken haben zur Folge, dass direkt im Target nur ungefähr 7,7 mJ Pulsenergie zur Verfügung stellen. Damit können Spitzenintensitäten von bis  $7 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  erreicht werden.

Um Experimente mit sowohl linearer als auch elliptischer Laserpolarisation durchzuführen, kam eine breitbandige  $\lambda/4$ -Wellenplatte aus Glimmer der Firma B.Halle zum Einsatz. Die maximal erreichbare Elliptizität war durch die Bandbreite des Lasers und die Wellenlängenabhängigkeit der Phasenverschiebung in der Wellenplatte auf  $\epsilon \approx 0,95$  begrenzt. Es wurde festgestellt, dass dieser Wert von der Ausrichtung der Eingangspolarisation in die Fokussieroptik aus Spiegel und Parabel abhängt und nur für vertikale Eingangspolarisation erreicht wird. Die Laserpolarisation wurde mit einem polarisierenden Strahlteilerwürfel und einem Leistungsmesser, der nach dem Durchgang des Laserstrahls durch die Interaktionskammer platziert wurde, charakterisiert. Die Messung an dieser Stelle hinter dem Austrittsfenster der Ionenstrahlanlage stellt sicher, dass die im Experiment verwendete und nicht durch andere Optiken beeinflusste Polarisation bestimmt wird. Die in Abhängigkeit der Orientierung des Polarisators gemessene transmittierte Leistung wurde mit einer Funktion der Form  $\cos^2$  angefitet. Daraus wurde

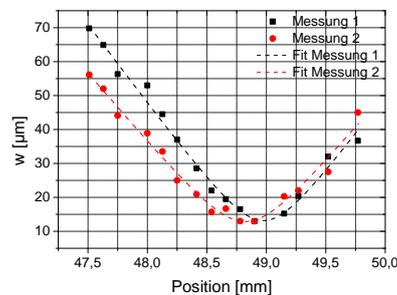


Abbildung 4.4: Bestimmung des Laserstrahlradius  $w$  in Abhängigkeit der Position der CCD-Kamera mit Fit zur Bestimmung des minimalen Strahlradius und der Rayleighlänge für zwei verschiedene Messungen.

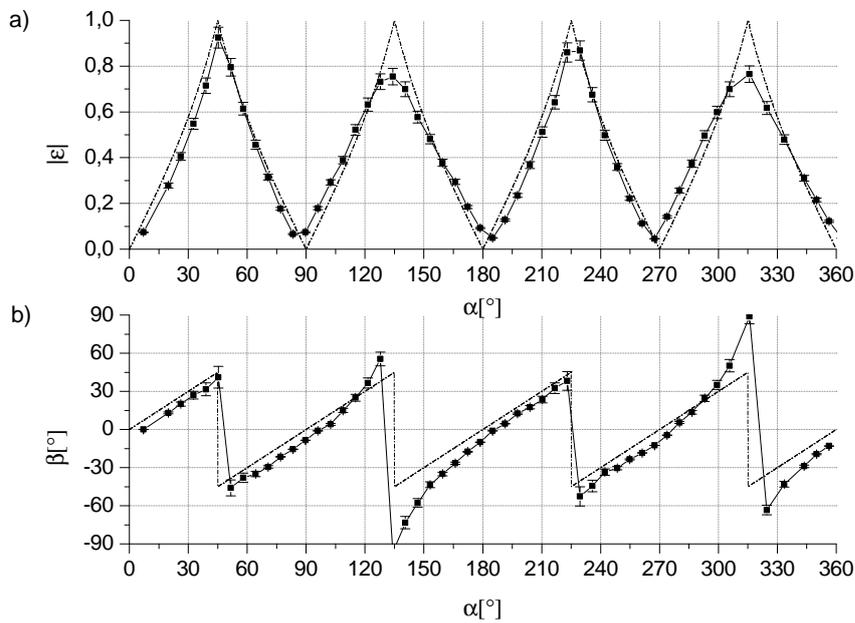


Abbildung 4.5: Ellipsometriemessungen: a) Elliptizität  $\epsilon$  und b) Drehwinkel  $\beta$  der Polarisation nach der  $\lambda/4$ -Wellenplatte in Abhängigkeit der Orientierung der Wellenplatte  $\alpha$ . Die unterbrochene Linie zeigt jeweils das Verhalten einer idealen  $\lambda/4$ -Wellenplatte.

die Elliptizität und die Orientierung der Hauptachse der Polarisation im Laborsystem festgestellt. Beides sind für die Auswertung des Experimentes sehr kritische Parameter. Eine genaue Kenntnis der Elliptizität wurde benötigt, um eine korrekte Umrechnung in elliptizitätskorrigierte Koordinaten zu gewährleisten. Die Lage der Polarisationshauptachse ist sehr entscheidend, um eine Verdrehung der Zählrate in den gemessenen Impulsspektren gegenüber dieser Achse exakt zu bestimmen.

#### 4.4 Interaktionszone und Strahlüberlagerung

In der Interaktionszone kreuzen sich Ionen- und Laserstrahl genau senkrecht zueinander. Die Überlagerung des Laserfokus mit einem Durchmesser von etwa  $30 \mu\text{m}$  mit dem Ionenstrahl der Querschnittsfläche von  $0,16 \text{ mm}^2$  erfordert eine präzise Ausrichtung beider Strahlen sowie eine Möglichkeit, ihre Position zueinander im Raum zu bestimmen. Um die Überlagerung zu gewährleisten, werden beide Strahlen auf eine Metallspitze, die in die Interaktionskammer gefahren wird, ausgerichtet. Gelingt gleichermaßen die Abbildung der Spitze mit dem Ionenstrahl, beobachtbar auf dem Phosphorschirm, und die Abbildung der Spitze mit dem Licht des Laserstrahls, dann stimmen die Positionen der beiden Strahlen hinreichend überein, um

die Überlagerung mit der Zählrate ionisierter Partikel weiter zu optimieren.

Das Signal einer Photodiode stellt das vom Laserpuls ausgelöste Triggersignal zur Verfügung, um den Ionenstrahl mit der Periode der Laserrepetitionsrate abzulenken, sodass der Ionenstrahl nur einige  $\mu\text{s}$  um die Ankunftszeit des Laserpulses in der Interaktionszone präsent ist. An die Deflektorplatten wird eine Spannung angelegt, die den Ionenstrahl die restliche Zeit ablenkt. Dies reduziert das Rauschen, hervorgerufen durch auf den Detektor gestreute Ionen, erheblich.

Die Interaktion von Laserpuls und Ionen findet in einem longitudinalen elektrostatischem Feld eines Spektrometers statt. Es ermöglicht, die Ionen, in Abhängigkeit der Ladungsänderung, die die Ionen in der Laserinteraktion erfahren haben, in der Zeit zu separieren. Das Spektrometer besteht aus mehreren durch Widerstände verbundenen ringförmigen Edelstahlplatten, die senkrecht zum Ionenstrahl ausgerichtet sind. Die beiden Ringe am Eingang und Ausgang liegen auf Erdpotential, während an die Ringe, die die Interaktionszone begrenzen, eine Spannung von typischerweise  $U_{\text{spek}} = -125 \text{ V}$  angelegt ist. Die Ausrichtung des Spektrometers relativ zum Ionenstrahl wird durch Pinholes mit einem Durchmesser von 2 mm in zwei der Ringe gewährleistet.

Das durch die angelegte Spannung erzeugte longitudinale Feld beschleunigt die in das Spektrometer eintreffenden Ionen der Ladung  $q$  bis zum Interaktionspunkt um  $qU_{\text{spek}}$ . Nicht vom Laserfeld ionisierte Ionen werden bei ihrem Weg von der Interaktionszone zum Spektrometerausgang wieder um den selben Betrag der Potentialdifferenz  $qU_{\text{spek}}$  abgebremst. Erfahren die Ionen jedoch eine Änderung des Ladungszustandes durch Photoionisation, werden sie beim Verlassen des Spektrometers stärker abgebremst als sie beim Eindringen beschleunigt wurden. Die Geschwindigkeitsänderung und die Flugzeitänderung relativ zu den nicht ionisierten Ionen ist direkt proportional zur Ladungsänderung im Laserfokus  $\Delta qU_{\text{spek}}$ . Damit können die verschiedenen, durch den Ionisationsprozess im Laserfeld erzeugten, Ladungszustände eindeutig durch ihre Flugzeit identifiziert werden. Weiterhin werden durch das Feld des Spektrometers Photoelektronen eingefangen, die auf dem Detektor ein Rauschen erzeugen würden.

Zusätzlich zur zeitlichen Separation durch das Spektrometer findet eine Aufspaltung der Ladungszustände durch ein schwaches transversales elektrostatisches Feld nach dem Spektrometer statt. Das transversale Feld sorgt dafür, dass unterschiedliche Ladungszustände an unterschiedlichen Positionen auf den Detektor treffen. Je höher der Ladungszustand, desto größer wird die auf die Ionen wirkende Ablenkung.

Den Einfluss der zeitlichen und räumlichen Separation der verschiedenen durch die Ionisation entstandenen Ladungszustände ist in Abb. 4.7 dargestellt. Für die Auswertung kann daher für

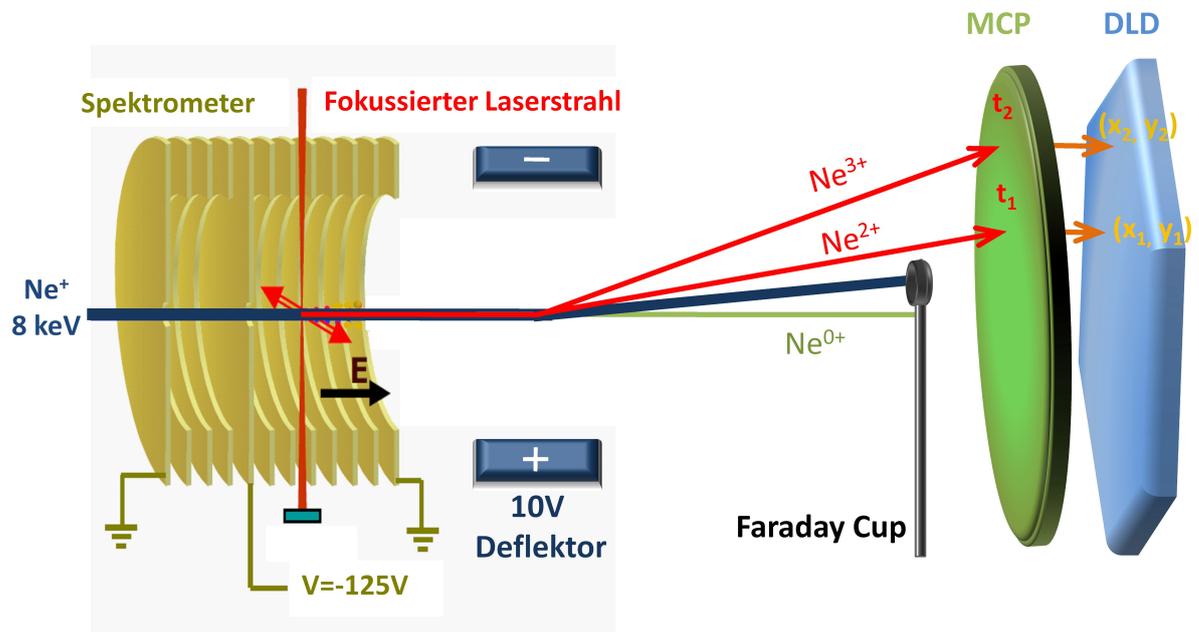


Abbildung 4.6: Schema der Interaktion und Detektion: i) Überlagerung von Laser- und Ionenstrahl im Spektrometer, ii) Transversale Separation verschiedener Ladungszustände durch Deflektorspannung, iii) Auffangen des primären Ionenstrahls durch Faraday-Cup und Detektion der Ladungszustände auf Multikanalplatte (MCP) und Delayline-Detektor (DLD). (Grafik verändert nach [38])

jeden Ladungszustand eine Auftrefffläche und Flugzeit definiert werden und danach sortiert werden.

In Abb. 4.7 a ist zu erkennen, dass zusätzlich zu dem Ionenstrahl und den ionisierten Ionen zur entgegengesetzten Seite des Detektors Teilchen detektiert werden. Diese besitzen dieselbe Geschwindigkeit wie der einfach geladene Ionenstrahl, werden aber vom transversalen Feld nicht abgelenkt. Es muss sich daher um neutrale Atome handeln, die durch Rekombination nach Kollision des Ionenstrahls mit Restgas in der Ionenstrahlanlage entstanden sind.

Der Teilchenfluss dieser neutralen Atome war jedoch sehr gering. Ionisationsereignisse aus diesem neutralen Strahl konnten nicht beobachtet werden, auch wenn der neutrale Strahl gezielt verstärkt wurde. Um die Ionisation der neutralen Atome von der Ionisation der Ionen zu unterscheiden, wurde der Ionenstrom vor der Interaktionskammer mit einem elektrostatischen Feld abgelenkt, sodass nur neutrale Atome das Laserfeld erreichen konnten. Die neutralen Atome konnten aufgrund ihrer Flugzeit direkt identifiziert werden. Durch Vergleich der Zählraten gestreuter Teilchen kann allerdings abgeschätzt werden, dass der neutrale Teilchenstrom um mindestens Faktor 200 geringer sein muss als der Ionenstrom. Diese geringe Teilchendichte ist dafür verantwortlich, dass auch nach längerer Messung keine Ionisationsereignisse aus neutralen Teilchen detektiert werden konnten.

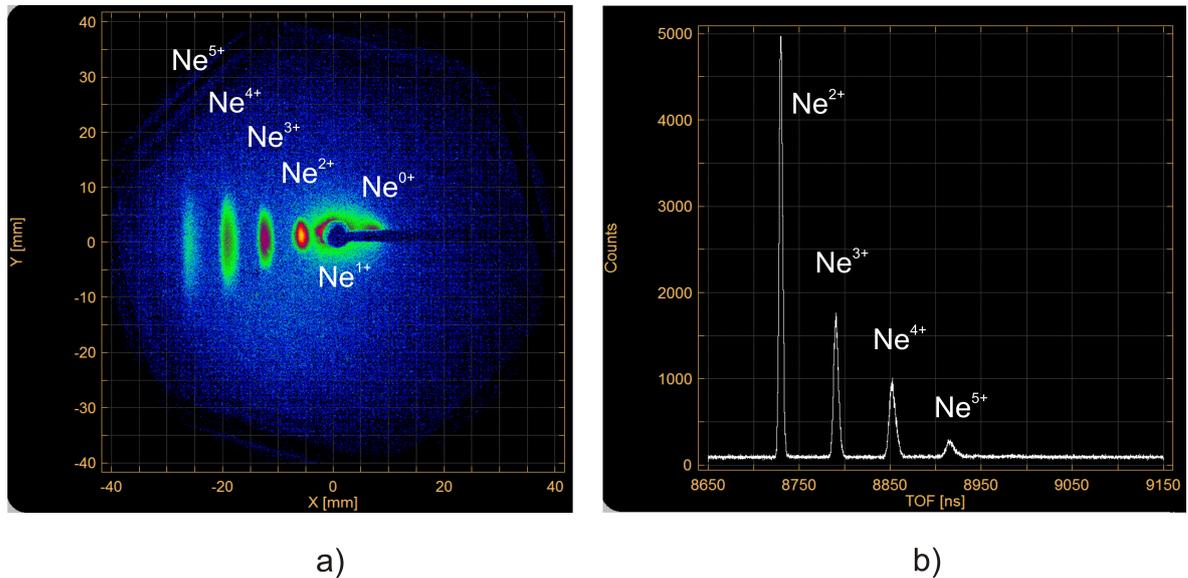


Abbildung 4.7: a) Positionssignal und b) Zeitsignal für Ionisation des Ne<sup>+</sup>-Ionenstrahls bis zu Ne<sup>5+</sup>. Deutlich erkennbar sind in a) die Separation der verschiedenen Ladungszustände durch das transversale elektrostatische Feld auf der Detektorfläche sowie der Faraday-Cup, der den primären Ionenstrahl auffängt. Auf dem Bild sieht man rechts vom einfach geladenen Ionenstrahl den Strahl neutraler Neontome (Siehe Text), die vom transversalen elektrischen Feld nicht abgelenkt werden und die Halterung des Faraday-Cups treffen. Aus b) erkennt man die zeitliche Separation der Ladungszustände und die mit der Ladungszahl abnehmenden Zählraten.

## 4.5 Detektorsystem und Auswertung

Zur Messung der Ionen nach der Interaktion mit dem Laser wird ein positions- und zeitauflösender Teilchendetektor bestehend aus einer Mikrokanalplatte (MCP) und einer Delayline-Anode (Roentdek anode DLD80X) verwendet. Die aktive Detektorfläche hat einen Durchmesser von 80 mm. Die Ankunftszeit und Position jedes auf den Detektor auftreffenden Teilchens wird in Koizidenz mit dem Triggersignal des Laserpulses von einer Photodiode registriert und digitalisiert.

Der Delayline-Detektor erlaubt die simultane Positionsrekonstruktion von zwei Ereignissen, auch wenn sie zeitlich nur durch einen Abstand von 1 ns getrennt sind. Der Abstand zwischen Ionen-Laser-Interaktion und Detektor beträgt 241 cm, sodass die Flugzeit für einfach geladene Ne<sup>+</sup>-Ionen ca. 8,7  $\mu$ s beträgt. Der primäre Ne<sup>+</sup>-Ionenstrahl wird mit einem Faraday-Cup mit einem Durchmesser von 2 mm vor dem Detektor aufgefangen (siehe Abb. 4.7), um ein Überlasten des Detektors zu verhindern. Nur die ionisierten Ionen treffen aufgrund der transversalen Ablenkung den Detektor. Die Zählrate realer Ereignisse ist aufgrund der ver-

gleichsowie geringen Ionendichte sehr klein und liegt in der Größenordnung von 1 Hz. Im Vergleich zur Laserrepetitionsrate erzeugt im Durchschnitt nur jeder tausendste Laserpuls ein detektiertes Ionisationsereignis. Um die Statistik der Messung zu erhöhen oder die benötigte Messzeit zu minimieren, sind hohe Targetdichten wünschenswert. Die Ionenstrahldichte  $\rho$  kann abgeschätzt werden mit

$$\rho = \frac{I}{Aq} \sqrt{\frac{m}{2qU_{acc}}}, \quad (4.1)$$

wobei  $A$  die Ionenstrahlquerschnittsfläche,  $I$  der Ionenstrom,  $m$  die Masse und  $q$  der Ladungszustand des Ions ist. Für typische  $\text{Ne}^+$  Experimente sind die Werte  $A \approx 0.25 \text{ mm}^2$ ,  $I \approx 2 \text{ nA}$  und  $\rho \approx 2 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-3}$ . Die Targetdichte ist limitiert durch die Emissionscharakteristik der Ionenquelle und die für die Fokussierung verwendete Ionenoptik. Raumladungseffekte auf Grund von Coulombwechselwirkung werden erst für deutlich höhere Targetdichten von Bedeutung. Mit einem Gasjet in vergleichbaren COLTRIMS-Experimenten lassen sich deutlich höhere Targetdichten generieren, bis zu  $3 \cdot 10^{11} \text{ Atome/cm}^2$  [44].

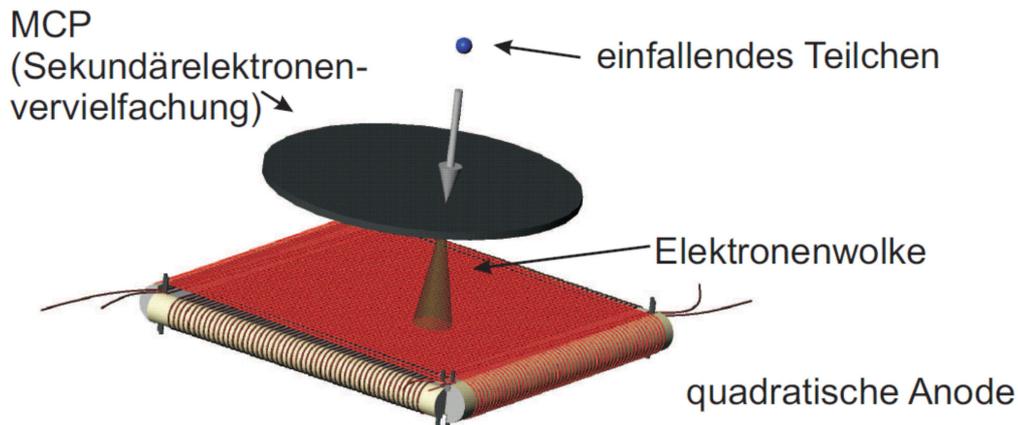


Abbildung 4.8: Schematischer Aufbau eines Delayline-Detektors: Trifft ein Teilchen z.B. ein Ion auf die Vorderseite der MCP, werden in der MCP Elektronen ausgelöst, die die MCP an der Rückseite verlassen und auf den Delayline-Detektor treffen. Der Delayline-Detektor kann aus zwei (wie in der Abbildung) oder drei (wie im Experiment verwendet) Drahtebenen aufgebaut sein, die der Registrierung der Position des einfallenden Teilchens dienen. (Abbildung entnommen aus [45])

Die Spannungssignale der MCP und des Delayline-Detektors werden mit dem Analog-Digital-Umsetzer (ADU, engl. ADC für Analog-to-Digital-Converter) fADC8 [46] ( 2-8 Kanälen mit je 8 bit und einer Datenrate zwischen 1,25 GS/s und 5 GS/s ) der Firma Roentdek digitalisiert und über USB ausgelesen. Die Aufnahme und die ersten Auswertungsschritte der Messdaten erfolgen mit der dazugehörigen Software “Cobold“. Dort können in CCF-Dateien zeitliche und

räumliche Filter zur Selektion der realen Ereignisse aus dem Untergrundrauschsignal sowie zur Unterscheidung der verschiedenen Ladungszustände gesetzt werden. Über die Flugzeit und die Fluglänge sowie die Position auf dem Detektor werden die drei Impulskomponenten jedes auf dem Detektor eingetroffenen Teilchens berechnet. Nach der Filterung und Berechnung werden die drei Impulskomponenten jedes Teilchens in Listenform abgespeichert und in Matlab weiter ausgewertet.

Aufgrund der geringen Zählrate beträgt die Dauer einer einzelnen Messung je nach Target und Intensität mehrere Stunden (5-25 h). Diese langen Messungen erfordern eine hohe Positionsstabilität des Ionen- und Laserstrahls sowie eine konstante Intensität. Eine Messung wird erst nach einer Aufwärmphase der Ionenquelle von mehreren Stunden gestartet, um den Einfluss von thermischen Veränderungen auf die Strahlposition zu minimieren. Treten doch Drifts in der Position des Ionenstrahls auf, können diese teilweise durch eine zeitabhängige Positionskorrektur in der Auswertung ausgeglichen werden. Kommt es zu Schwankungen der Laserleistung, die über das parallel digitalisierte Signal einer Photodiode registriert werden, müssen die Messergebnisse unterschiedlicher Laserleistungen separat ausgewertet werden.

## 4.6 Impulsauflösung

Die Auflösung der Messung ist limitiert durch die Auflösung des Detektors und die Eigenschaften des Ionenstrahles, vor allem seine transversale und longitudinale Anfangsgeschwindigkeitsverteilung.

### Anfangsgeschwindigkeit der Ionen

Das Extraktionspotential  $U_{\text{Ex}}$  an der Ionenquelle und der Ladungszustand der extrahierten Ionen  $q$  bestimmt die kinetische Energie der Ionen  $E_{\text{kin}} = q_0 e U_{\text{Ex}}$  und die daraus folgende Anfangsgeschwindigkeit  $v_0 = \sqrt{\frac{2q_0 e U_{\text{Ex}}}{m}}$  bzw. der Impuls  $p_0 = m v_0$  der Ionen in longitudinaler Richtung. Das Extraktionspotential beträgt typischerweise 8 kV. Mit  $p_0 \approx 4600$  a.u. benötigen  $\text{Ne}^+$ -Ionen für die Strecke zwischen Ionen-Laser-Wechselwirkung und Detektor (Distance Of Flight=  $DOF = 2.4\text{m}$ ) eine Flugzeit (Time Of Flight=TOF) von

$$TOF = DOF \sqrt{\frac{m}{2q_0 e U_{\text{Ex}}}} \approx 8,6 \mu\text{s}. \quad (4.2)$$

### Relative Impulsauflösung

Für die Genauigkeit der Messung ist die Auflösung des Detektors von Bedeutung. Dieser besitzt eine Zeitauflösung von  $\delta TOF \leq 0.5\text{ns}$  und eine Ortsauflösung von  $\delta x \leq 100\mu\text{m}$ .

Der im Laserfeld übertragene maximale Rückstoßimpuls  $\vec{p}_{\text{kin}} = -e\vec{A}(t_0)$  ist proportional dem Vektorpotential  $\vec{A}$  zum Ionisationszeitpunkt. Die resultierende Geschwindigkeitskomponente ist dann:  $v_{U_p} = \sqrt{\frac{4U_p}{m}}$ , wobei  $U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2}$  die ponderomotive Energie bezeichnet. Dabei ist  $m$  die Ionenmasse,  $\omega$  die Kreisfrequenz der Oszillation des Laserfeldes und  $E$  die Stärke des elektrischen Feldes zum Zeitpunkt der Ionisation. Die maximale zusätzliche kinetische Energie ist  $E_{\text{kin}} = 2U_p$ . Für den Fall linearer Laserpolarisation ist die Länge  $x_{U_p}$ , über die sich die Impulsverteilung der Ionen nach einer Flugstrecke  $DOF$  auf dem Detektor entlang der Polarisationsrichtung aus dem Mittelpunkt der Verteilung erstreckt,

$$x_{U_p} = v_{U_p} \cdot TOF = \sqrt{\frac{DOF^2}{q_0 e U_{\text{Ex}}}} \sqrt{\frac{e^2 E^2}{4m\omega^2}} \propto DOF \omega \sqrt{\frac{I_L}{m}}. \quad (4.3)$$

Da die Ortsauflösung auf dem Detektor fest gegeben ist, ist die relative Impulsauflösung um so größer, je größer die räumliche Ausdehnung  $x_{U_p}$  ist. Daher kann die Auflösung durch Verlängerung der Flugstrecke zwischen Laserwechselwirkung und Detektor, durch eine kleinere Anfangsgeschwindigkeit der Ionen infolge eines geringeren Extraktionspotentials an der Ionenquelle oder durch Verwendung von Ionen mit geringerer Masse erhöht werden. Eine andere Möglichkeit stellt die Erhöhung der ponderomotiven Energie dar, was durch eine höhere Ionisationsintensität oder eine höhere Wellenlänge erreicht werden kann. Der maximale Impuls  $p_{\text{max}}$  eines Ions senkrecht zum Ionenstrahl, das auf den Detektor mit dem Radius  $R$  treffen kann, beträgt  $p_{\text{max}} = m \cdot \frac{R}{TOF} = \frac{R}{DOF} \sqrt{q e U_{\text{Ex}} m}$ .

Eine Änderung der Impulskomponente parallel zum Ionenstrahl infolge des Rückstoßimpulses nach Ionisation ist klein gegenüber dem Anfangsimpuls der Ionen im Ionenstrahl, sodass die daraus folgende Änderung der Flugzeiten bzw. Ankunftszeiten  $TOF$  auf dem Detektor klein gegen die Flugzeit ist.

$$TOF = DOF/v = DOF \cdot \left( \sqrt{\frac{2q_0 U_{\text{Ex}}}{m}} \pm \sqrt{\frac{e^2 E^2}{2m^2 \omega^2}} \right)^{-1} \quad (4.4)$$

Nach einer Taylorentwicklung für  $x \ll b$  vereinfacht sich dies mit  $\frac{a}{b \pm x} = \frac{a}{b} \mp \frac{ax}{b^2} + \frac{ax^2}{b^3} \mp \dots$  zu

$$TOF = DOF \sqrt{\frac{m}{2q_0 U_{\text{Ex}}}} \mp DOF \frac{m}{2q_0 U_{\text{Ex}}} \sqrt{\frac{e^2 E^2}{2m^2 \omega^2}} + DOF \left( \frac{m}{2q_0 U_{\text{Ex}}} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{e^2 E^2}{2m^2 \omega^2} \quad (4.5)$$

Damit ist die Aufspaltung in der Flugzeit

$$\Delta TOF = \mp \frac{DOF}{2q U_{\text{Ex}}} \sqrt{\frac{e^2 E^2}{2\omega^2}} + DOF \left( \frac{m}{2q U_{\text{Ex}}} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{e^2 E^2}{2m^2 \omega^2} \quad (4.6)$$

und ist proportional zu  $\propto \sqrt{\frac{1}{m(qU_{\text{Ex}})^3}}$ . Die Aufspaltung kann durch Verlängerung der Flugstrecke, Verringerung der Anfangsgeschwindigkeit oder durch einen höheren Rückstoßimpuls

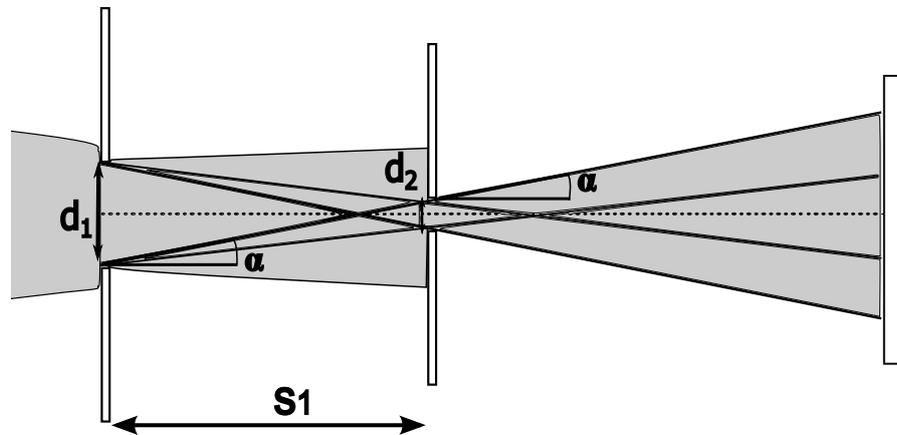


Abbildung 4.9: Schema der Einschränkung der transversalen Anfangsgeschwindigkeit durch zwei Blendensysteme.

erhöht werden. Zu beachten ist, dass eine längere Flugstrecke den Einfluss der Anfangsgeschwindigkeiten auf die Impulsdetektion nicht verändert.

### Anfangsgeschwindigkeitsverteilung der Ionen

Die Auflösung bei der Detektion der ionisierten Ionen ist limitiert durch die Verteilung der Anfangsgeschwindigkeit der Ionen. Die auf dem Detektor messbare Impulsverteilung stellt eine Faltung der Impulsverteilung nach der Ionisation mit der Anfangsimpulsverteilung der Ionen dar. Um eine gute Auflösung zu gewährleisten, sollte die Anfangsimpulsverteilung der Ionen klein gegen den Wert des zu messenden Impulses sein.

Die transversale Ausdehnung des Ionenstrahls wird eingestellt über den Abstand zweier Blendensysteme 4.2. Die maximale Anfangsgeschwindigkeit der Ionen in transversaler Richtung des Ionenstrahls kann über die Größe der mit den Blenden eingestellten Apertur und den Abstand der beiden Blendensysteme ( $L=2m$ ) abgeschätzt werden zu  $v_{\perp} = \frac{\Delta d}{T_{OF}} = \frac{\Delta d}{L} \sqrt{\frac{2qeU_{Ex}}{m}}$  (siehe Abb. 4.6). Die Größe der Apertur  $d_1$  beträgt typischerweise  $<400\mu m$ . Einfacher lässt sich der Zusammenhang zwischen longitudinalen und transversalen Anfangsimpuls und halben Öffnungswinkel  $\alpha$  über das Verhältnis  $\frac{p_{\perp}}{p_{\parallel 0}} = \frac{d_1 + d_2}{2s_1} \approx \alpha$  ausdrücken. Für zwei identische Blenden ergibt sich ein Winkel von  $0.25$  mrad und ein Impuls von  $p_{\perp} \approx 2.3$  a.u.. Zu beachten ist jedoch, dass nur Ionen aus dem Laserfokus ionisiert und detektiert werden, sodass der Laserfokus eine zusätzliche Blende darstellt. Damit folgt ein Öffnungswinkel von  $\approx 0.1$  mrad und ein maximaler Impuls von  $p_{\perp} \approx 0,6$  a.u. .

Die Abschätzung der Geschwindigkeitsverteilung entlang der Propagationsrichtung des Ionen-

strahls ist deutlich schwieriger. Sie ist durch die Extraktionseigenschaften der Ionen aus dem Plasma der Entladung gegeben. In der Literatur findet sich für die Breite der Energieverteilung von Ionen einer Duoplasmatronionenquelle für Wasserstoff die Angabe  $\ll 20$  eV [42]. Dies entspricht einer Geschwindigkeitsverteilung  $\Delta v_{\parallel}/v_{\parallel} \approx 0.001$ . Zusätzlich wird die Anfangsgeschwindigkeitsverteilung durch den Flug der Ionen durch den Wienfilter eingeschränkt [47]. Besitzen Ionen eine Geschwindigkeit, die sich von der Bedingung für eine gleichförmige Bewegung im Wienfilter  $v_{\parallel 0} = E/B$  unterscheidet, erfahren sie eine transversale Ablenkung und gelangen nicht durch die nachfolgende Apertur. Die maximale Breite einer Geschwindigkeitsverteilung nach Durchgang durch den Wienfilter kann mit folgender Gleichungen abgeschätzt werden:

$$\Delta v_{\parallel} = \Delta d \cdot \left[ \frac{m}{qB} \left( \cos \left( \frac{qB^2 L}{mE} \right) - 1 \right) - s \frac{B}{E} \sin \left( \frac{qB^2 L}{mE} \right) \right], \quad (4.7)$$

wobei  $d$  die Größe der Apertur nach dem Filter,  $L$  die Wienfilterlänge,  $s$  die Driftstrecke vor dem Pinhole und  $E$  bzw.  $B$  die elektrostatische und magnetische Feldstärke im Wienfilter bezeichnet. Damit beträgt die maximale Breite einer Geschwindigkeitsverteilung für  $\text{Ne}^+$  nach dem Wienfilter  $\Delta v_{\parallel}/v_{\parallel} \approx 0.0005$ . Da die Ionen einen sehr hohen Anfangsimpuls haben, stellt dies für Neon eine maximale Impulsabweichung von 2,5 a.u. dar. Wie die Messungen zeigen, werden jedoch deutlich kleinere Impulsstrukturen beobachtet. Damit muss die Geschwindigkeitsverteilung, die durch die Extraktion aus der Ionenquelle bereit gestellt wird, deutlich kleiner sein als dieser Wert.

Unter Einbeziehung der Messdaten lässt sich eine Abschätzung der Geschwindigkeitsverteilung durchführen. Unter der Annahme, dass die Impulsaufösung in transversaler Richtung bekannt ist, kann aus den Messungen für lineare Polarisation durch Vergleich der Impulsbreiten in den beiden senkrecht zur Laserpolarisation, die longitudinale Geschwindigkeitsverteilung zum Ionenstrahl berechnet werden. Da die Detektoraufösung im Vergleich zum Einfluss der Geschwindigkeitsverteilungen sehr gut ist, kann ihr Einfluss im Folgenden vernachlässigt werden. Die gemessene Impulsverteilung senkrecht zur Laserpolarisation ist dann eine Faltung der tatsächlichen Impulsverteilung nach der Ionisation und der Anfangsimpulsverteilung der Ionen im Ionenstrahl. Aus der Impulsverteilung der  $x$ -Richtung, die sowohl senkrecht zur Richtung  $y$  der Laserpolarisation als auch zum Ionenstrahl  $z$  ist, kann die tatsächliche Breite  $w_T$  senkrecht zur Laserpolarisation nach der Ionisation berechnet werden zu  $w_T = \sqrt{w_x^2 - w_{\perp}^2}$ , wobei  $w_x$  die Breite der gemessenen Impulsverteilung und  $w_{\perp}$  die abgeschätzte Breite der Ionenanfangsimpulsverteilung senkrecht zum Ionenstrahl ist. Die Breite der Ionenanfangsimpulsverteilung  $w_{\parallel}$  berechnet sich zu  $w_{\parallel} = \sqrt{w_z^2 - w_T^2}$ . Demnach ist die maximale longitudinale Anfangsgeschwindigkeit  $p_{\parallel}$  mit  $\approx 0,747$  a.u. .

Damit ist eine Abschätzung der Anfangsimpulsverteilungen der Ionen in allen drei Raum-

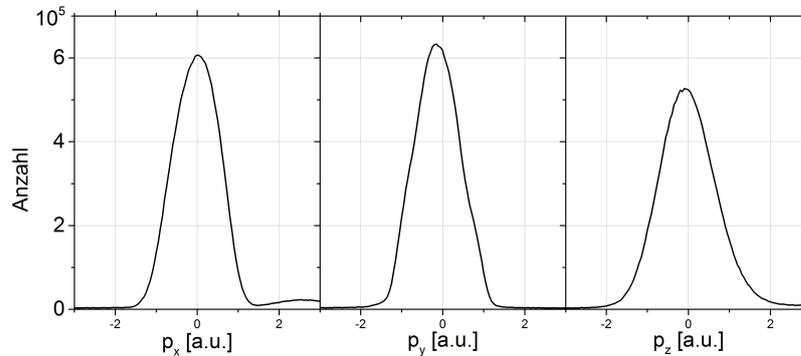


Abbildung 4.10: Impulsverteilung in  $p_x$ ,  $p_y$  und  $p_z$  der  $H_2^+$ -Ionen aus der Messung der Dissoziation von  $H_2^+$ . Dargestellt ist die Verteilung der Summe der Impulse der beiden Fragmente nach der Dissoziation, die aufgrund der Impulserhaltung dem Anfangsimpuls der Ionen entspricht. Die Halbwertsbreiten der Verteilungen in  $p_x$  und  $p_y$  betragen  $\approx 1,45$  a.u. bzw. in  $p_z \approx 1,55$  a.u..

richtungen möglich und über die kinetische Energie kann die korrespondierende Temperatur  $T = \frac{1}{2m}(2p_{\perp}^2 + p_{\parallel}^2)$  ausgerechnet werden  $\approx 3,7$  K.

Zum Vergleich konnten experimentelle Daten zur Dissoziation von  $H_2^+$  analysiert werden. In Abb. 4.6 ist die Impulsverteilung der Summe der Impulse der beiden Fragmente  $H$  und  $H^+$  dargestellt. Im Gegensatz zu den Ionisationsexperimenten ist es durch diesen Ansatz aufgrund der Koinzidenzdetektion der Fragmente möglich, die Impulsverteilung der Ionen, die aus dem Laserfokus zum Experiment beitragen, direkt zu messen. Die Verteilungen entlang der drei Raumrichtungen sind um Null zentriert. Diese Anfangsgeschwindigkeitsverteilung ist dabei aber mit der Detektorauflösung gefaltet.

Im Vergleich zu diesen Abschätzungen beträgt die Impulsauflösung eines COLTRIMS-Aufbaus transversal zur Spektrometerachse für He-Ionen 0.18 a.u. und ist limitiert durch die Größe der Targetausdehnung von 1 mm. Parallel zur Spektrometerachse wird die Auflösung mit 0.01 a.u. angegeben und ist ebenfalls durch die Genauigkeit der Flugzeitmessung von 1 ns begrenzt [37]. Für andere Gase mit höherer Masse verringert sich jedoch die Auflösung.

# Kapitel 5

## Ionenimpulsverteilungen nach n-facher Ionisation von $\text{Ne}^+$

### 5.1 Überblick

Nach der Überlagerung des  $\text{Ne}^+$ -Ionenstrahls mit den Laserpulsen konnten höhere Ladungszustände von  $\text{Ne}^{2+}$  bis  $\text{Ne}^{5+}$  detektiert werden. Die Impulsspektren der verschiedenen Ladungszustände von Neonionen werden in Abb. 5.2 für verschiedene Elliptizitäten der Laserpolarisation gezeigt. Die Elliptizitäten von linearer bis elliptischer Polarisation wurden für jede Messung durch Rotation der Stellung der  $\lambda/4$ -Wellenplatte eingestellt.

Da der Ionisationsprozess stark intensitätsabhängig ist, werden in unterschiedlichen Bereichen des Laserfokus verschiedene Ladungszustände erzeugt (siehe Kap. 3.1). So reicht die Intensität nur in einem kleinen Bereich im Laserfokus aus, um  $\text{Ne}^+$  viermal zu ionisieren. Außerhalb des Fokus nimmt die Intensität ab und es schließen sich von innen nach außen die Bereiche der Dreifach-, Doppel- und Einfachionisation an (siehe Abb. 5.1).

Für die Messungen wurde die maximale Intensität, die mit dem Messaufbau und den Laserparametern möglich war, eingestellt. Eine hohe Intensität ist nötig, um die höchstmöglichen Ladungszustände zu beobachten und eine hohe Zählrate und eine gute Statistik zu gewährleisten. Die Intensitäten der Laserpulse wurde für die verschiedenen Elliptizitäten nicht verändert.

Bei gleicher Intensität nimmt für höhere Elliptizitäten die Spitzenfeldstärke ab, sodass die für den Tunnelvorgang entscheidende Stärke des elektrischen Feldes nicht identisch ist. Daraus folgt, dass für höhere Elliptizitäten die maximale elektrische Feldstärke und damit die Zählrate abnimmt und nicht mehr für alle Fälle Impulsspektren gezeigt werden können.

In den folgenden Kapiteln ist zu beachten, dass die Impulse der Ionen und nicht der Elek-

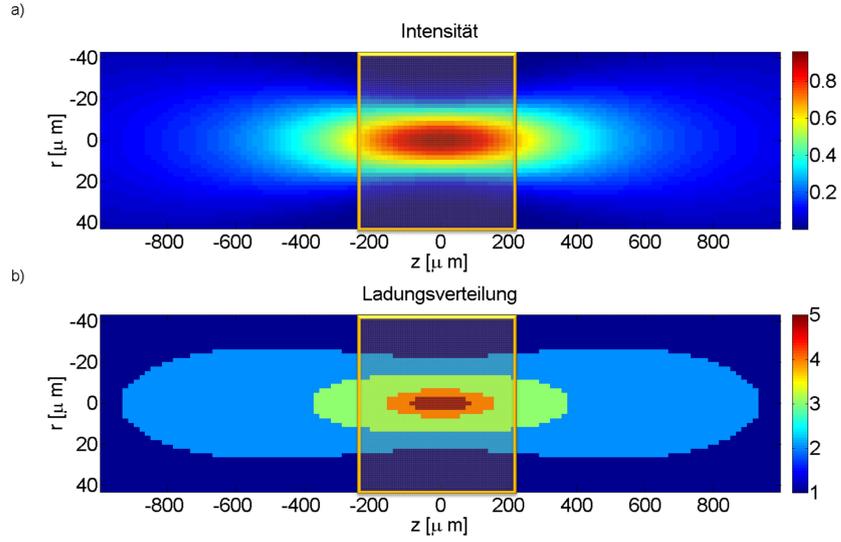


Abbildung 5.1: a) Intensität im gaußschen Fokus mit einer maximalen Intensität  $6.5 \cdot 10^{16} \text{W/cm}^2$  ( $\epsilon = 0,75$ ,  $r_0 = 10 \mu\text{m}$ ,  $z_r = 300 \mu\text{m}$ ) in der r-z-Ebene. Der Rahmen markiert die Ausdehnung des Ionenstrahles. b) Berechnung der Ladungszustände in verschiedenen Intensitätsbereichen des Fokus. Die Farbe zeigt den Ladungszustand nach der Ionisation durch den Laserpuls an (Dunkelblau:  $\text{Ne}^+$ , Hellblau:  $\text{Ne}^{2+}$ , Grün:  $\text{Ne}^{3+}$ , Orange:  $\text{Ne}^{4+}$ , Rot:  $\text{Ne}^{5+}$ ), der von innen nach außen von  $\text{Ne}^{5+}$  nach  $\text{Ne}^{2+}$  abnimmt. Als Ionisationsrate wurden die quasistatische Ionisationsrate genutzt.

tronen gemessen wurden. In Kap. 2.3.1 wurde erläutert, welchen Impuls das Elektron im Laserfeld nach einem Ionisationsvorgang erhält. Die Impulsbetrachtungen für das Elektron gelten analog auch für das Ion, das als geladenes Teilchen den gleichen Impuls, nur mit entgegengesetzten Vorzeichen, aufnimmt. Auch im Bild der Impulserhaltung  $\vec{p}_{\text{Ion}} + \vec{p}_{\text{elec}} = 0$  gilt für einen Einfachionisationsprozess daher:

$$\vec{p}_{\text{Ion}} = -\vec{p}_{\text{elec}}. \quad (5.1)$$

Für einen Ionisationsschritt werden der Elektronenimpuls und Ionenimpuls in folgenden Erklärungen teilweise synonym verwendet.

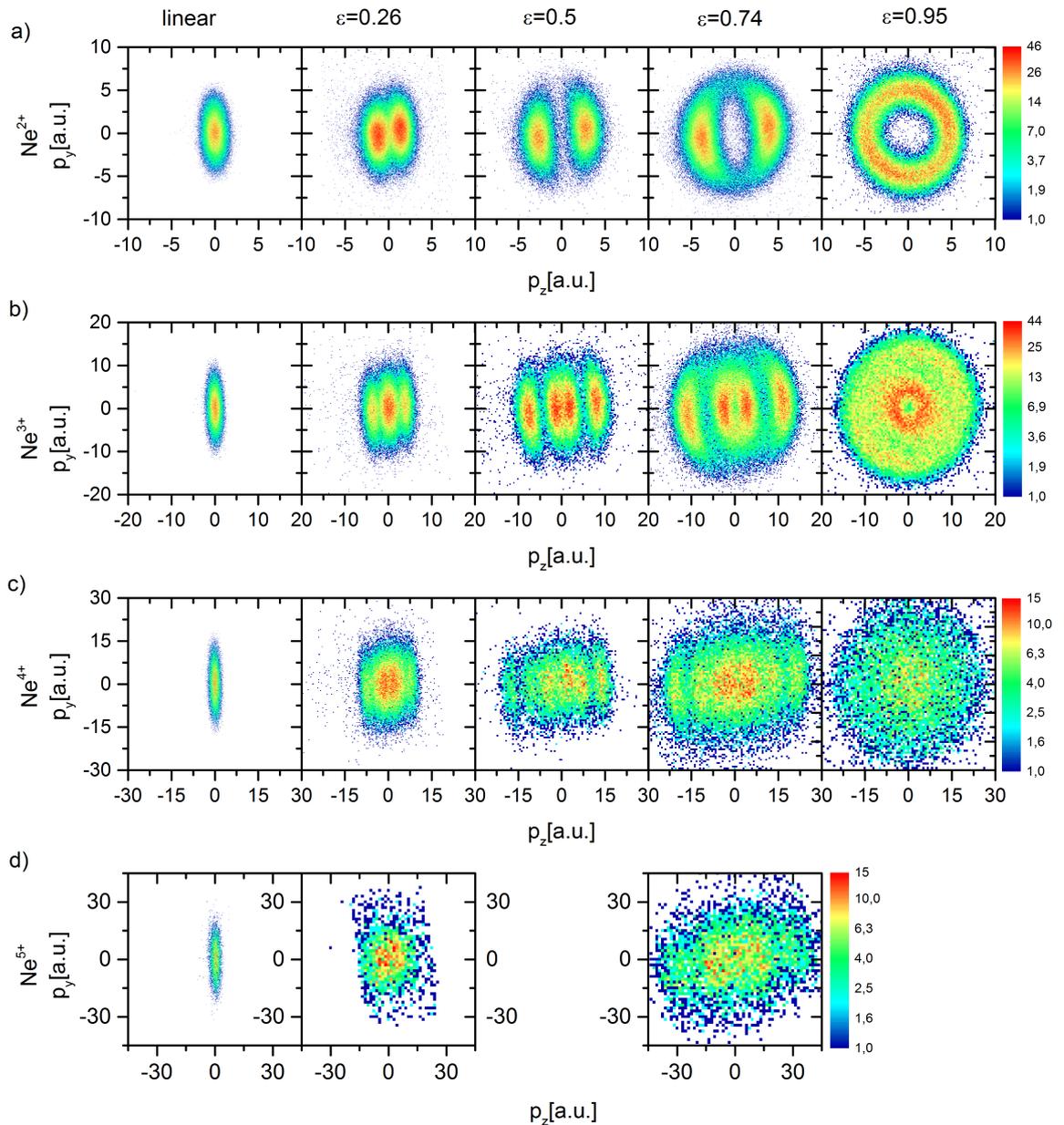


Abbildung 5.2: Ionenimpulsspektren in der Polarisationssebene für verschiedene Elliptizitäten (Spalten) von linear bis nahezu zirkularer Polarisierung für Einfach-, Doppel-, Dreifach- und Vierfachionisation (Zeilen) von  $\text{Ne}^+$ -Ionen. Die Hauptachse der Laserpolarisation zeigt in  $p_y$ -Richtung. In einer Messung können jeweils alle Ladungszustände parallel detektiert werden. Jeweils die Spektren der unterschiedlichen Elliptizitäten gehören in den verschiedenen Spalten gehören zu unterschiedlichen Messungen.

## 5.2 Einfachionisation ( $n=1$ )

Die erste Zeile von Abb. 5.2 zeigt die Impulsverteilung von  $\text{Ne}^{2+}$ -Ionen nach der Einfachionisation von  $\text{Ne}^+$  zu  $\text{Ne}^{2+}$ . Die Projektionen parallel und senkrecht zur Polarisationsachse sind in Abb. 5.3 gezeigt und besitzen eine Verteilung, die durch Gaußverteilungen beschrieben werden kann. Für lineare Polarisation weisen die Impulsspektren ein einzelnes Maximum zentriert um den Koordinatenursprung auf, welches in Richtung der Laserpolarisation ausgeht ist.

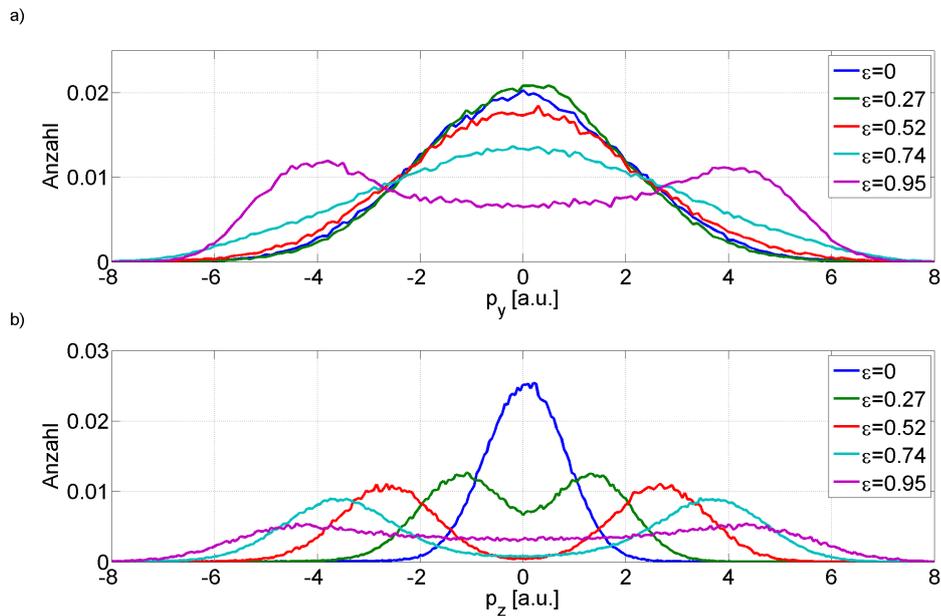


Abbildung 5.3: Histogramme entlang der Polarisationsachsen für verschiedene Elliptizitäten von linear nach fast zirkular für  $\text{Ne}^+$  nach  $\text{Ne}^{2+}$ . Die Verteilungen sind jeweils auf die Summe normiert.

Für steigende Elliptizitäten  $\epsilon > 0$  kommt es zur Aufspaltung des einzelnen Maximums in zwei Maxima, die entlang der kleinen Achse der Polarisationsellipse separiert sind (siehe Abb. 5.3). Die Form der Verteilung folgt dabei der Geometrie und Symmetrie des Vektorpotentials des elliptisch polarisierten Laserpulses. Für fast zirkulare Polarisation wird die Verteilung nahezu unabhängig vom Winkel und formt einen Ring. Für zirkulare Polarisation beschreibt der Betrag der Feldstärke keine Oszillation, nur die Richtung dreht sich mit der Phase des Laserfeldes, sodass bis zum Maximum des Laserpulses (oder bis zur Entleerung des Grundzustandes) die Ionisationsrate monoton ansteigt und nicht von der Phase bzw. dem Winkel der Verteilung abhängig ist.

Für die elliptische Polarisation  $0 < \epsilon < 1$  ist klar erkennbar, dass die Ionisation entlang

der kleinen Achse der Ellipse der Impulsverteilung die Maxima zeigt. Grund dafür ist (siehe Kap. 2.2), dass die Ionisationsrate der Amplitude der elektrischen Feldstärke folgt, der Impuls aber vom Vektorpotential zum Zeitpunkt der Ionisation bestimmt wird (siehe Kap. 3.3). Die Elektronen werden deswegen mit der höchsten Wahrscheinlichkeit an den Maxima des elektrischen Feldes ionisiert. Aufgrund der Phasenverschiebung zwischen Vektorpotential und elektrischem Feld nimmt der Betrag des Vektorpotentials zum Zeitpunkt der maximalen Ionisationsrate seinen minimalen Wert an. Das bedeutet, dass die Elektronen bzw. Ionen mit viel höherer Wahrscheinlichkeit einen Impuls erhalten, der der kleinen Halbachse der Polarisationsellipse des Vektorpotentials entspricht. Dies führt für elliptische Polarisation zur Ausbildung der charakteristischen halbmondförmigen Doppelfiguren. Je kleiner die Elliptizität  $\epsilon$  der Laserpolarisation ist, desto geringer wird der Betrag der für den Impuls verantwortlichen kleinen Halbachse der Polarisationsellipse des Vektorpotentials, sodass der Abstand zwischen den beiden Maxima in der Impulsverteilung abnimmt. Für lineare Polarisation nimmt das Vektorpotential zum Zeitpunkt der Ionisation nur Werte um Null an und damit liegen die beiden Maxima genau übereinander.

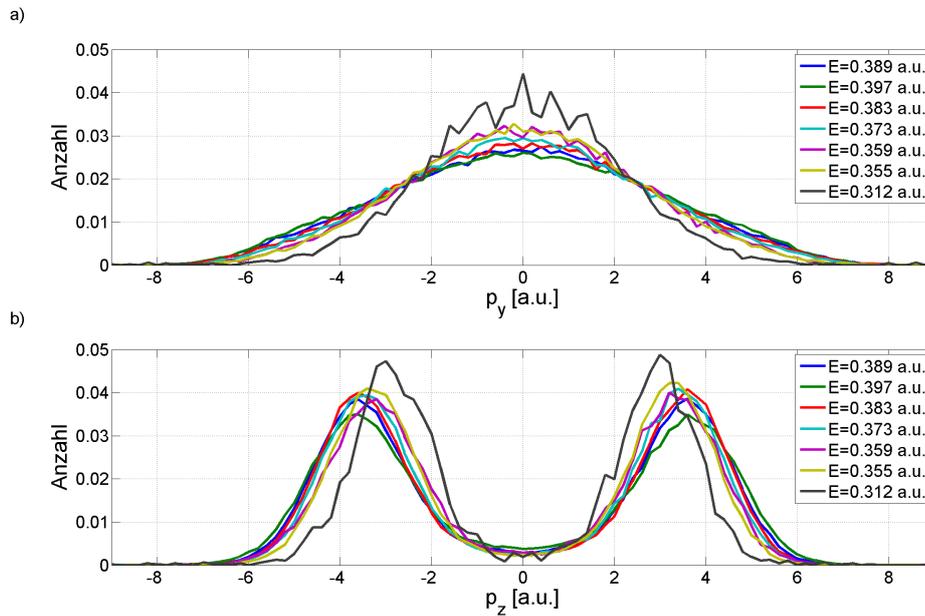


Abbildung 5.4: Histogramme entlang Polarisationsachsen für verschiedene Ionisationsfeldstärken (Angaben in a.u.) für  $\text{Ne}^+$  nach  $\text{Ne}^{2+}$ . Die Verteilungen sind jeweils auf die Summe normiert.

Besonders interessant sind die Messungen, bei denen der übertragene Impuls senkrecht zur Polarisation groß ist und die beiden Maxima gut voneinander getrennt sind, aber noch nicht wie für zirkuläre Polarisation ineinander übergehen. Dies ist bei einer Elliptizität  $\epsilon \approx 0,75$

der Fall. Weiterhin ist hier am besten zu erkennen, dass die höchste Zählrate nicht entlang der Polarisationsachse ausgerichtet, sondern um einen Winkel  $\Theta$  verdreht ist.

Für diese Elliptizität wurden Messungen mit verschiedenen Spitzenintensitäten durchgeführt. Die Intensität wurde dabei variiert, indem die Fokusposition in Relation zum Ionenstrahl verändert wurde, sodass effektiv der Durchmesser des Laserfokus erhöht und die Spitzenintensität damit abgesenkt wurde. Damit wird das Fokusvolumen vergrößert und eine höhere Zählrate bei niedriger Intensität erzielt.

Die Form der Impulsverteilungen bleibt für verschiedene Intensitäten erhalten, jedoch ändert sich die Größe der Impulsverteilung. Die Projektion entlang der kleinen Halbachse der Polarisation für verschiedene Intensitäten sind in Abb. 5.1 dargestellt. Der Wert des übertragenen Impulses ist in Abb. 5.5 in Abhängigkeit der Intensität gezeigt. Je höher die Intensität ist, desto größer wird der übertragene Impuls. Für weiter steigende Intensitäten überwiegt die Mehrfachionisation zu höheren Ladungszuständen und der Impuls steigt nicht weiter. In den Bereichen hoher Intensität finden keine Einfachionisationsereignisse statt. Für hohe Laserintensitäten rücken die Intensitätsbereiche, die zur beobachteten Einfachionisation beitragen, aus dem Zentrum des Laserfokus (siehe Abb. 5.1).

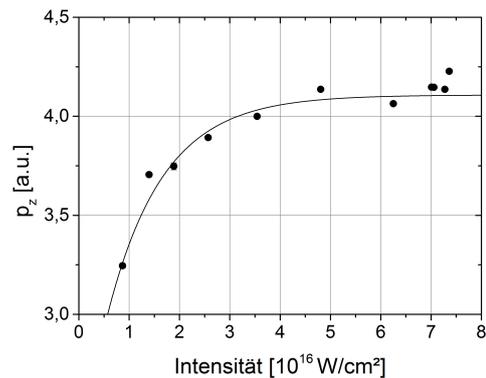


Abbildung 5.5: Größe des übertragenen Impulses entlang  $p_z$  in Abhängigkeit der eingestellten Spitzenintensität.

### 5.3 Doppelionisation ( $n=2$ )

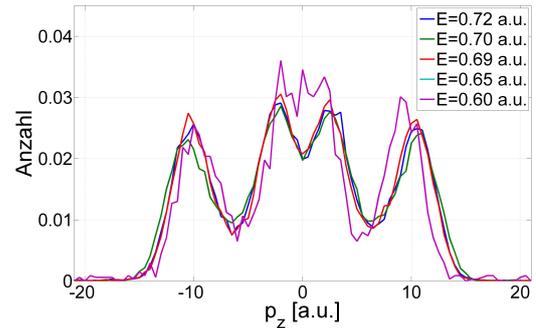
Die zweite Zeile von Abb. 5.2 zeigt die Impulsspektren von  $\text{Ne}^{3+}$ -Ionen nach Doppelionisation von  $\text{Ne}^+$  zu  $\text{Ne}^{3+}$ . In der Literatur unterscheidet man zwischen der sequentiellen und der nichtsequentiellen Doppelionisation. Die Bezeichnung der sequentiellen Doppelionisation (SDI) impliziert die schrittweise, zeitlich getrennte Ionisation des ersten und zweiten Elektrons ohne direkte Korrelation wie z.B. durch Rückstreuung des ersten Elektrons. Im Gegensatz dazu versteht man unter der nichtsequentiellen Doppelionisation (NSDI) die Ionisation des zweiten Elektrons durch das zuerst ionisierte und anschließend im Laserfeld auf das Ion zurück beschleunigte Elektron.

Für das vorliegende Experiment ist aufgrund des Intensitätsbereiches und der elliptischen Polarisierungen sowie der charakteristischen Form der Impulsspektren nur der sequentielle

Doppelionisationsmechanismus relevant. Die nichtsequentielle Ionisation weist im Vergleich zur sequentiellen Ionisation eine geringe und elliptizitätsabhängige Wahrscheinlichkeit auf und spielt deswegen bei den im Experiment erreichten Zählraten und verwendeten Elliptizitäten keine Rolle. Für elliptische Polarisation wird das Elektron vom Feld transversal abgelenkt und die Rückstreuung mit dem Ion wird unwahrscheinlich [48].

Wie bei der Einfachionisation weist das Impulsspektrum der Doppelionisation für lineare Polarisation ein einzelnes Maximum auf. Die Ausdehnung entlang der Polarisationsachse ist für den Fall der Doppelionisation deutlich größer. In dieser Richtung addieren sich der Impuls des ersten und zweiten Ionisationsschrittes. Für steigende Elliptizitäten  $\epsilon > 0$  tritt eine Aufspaltung der Impulsverteilung in vier Maxima auf. Für kleine Elliptizitäten ( $\epsilon=0,26$ ) kommt es zur Überlagerung der beiden inneren Maxima, sodass nur drei Maxima in der Verteilung aufgelöst werden können. Für höhere Elliptizitäten sind die vier Maxima sehr gut aufgelöst. Bei fast zirkularer Polarisation verschmelzen jeweils die beiden inneren und die beiden äußeren Maxima zu einem Ring, sodass sich eine Doppelringstruktur ausbildet.

Die Entstehung mehrerer Maxima in den Ionenpektren infolge sequentieller Mehrfachionisation ist ein einfach zu verstehender Effekt und in der Literatur beschrieben [13, 49]. Im Fall der Doppelionisation entspricht der Impuls des Ions genau der Summe der Impulse der Elektronen, die aus diesem Ion ionisiert wurden.



$$\vec{p}_{\text{Ion}} = -(\vec{p}_{e1} + \vec{p}_{e2}) \quad (5.2)$$

Abbildung 5.6: Projektion der Ionenimpulsspektren nach Doppelionisation entlang der  $p_z$ -Achse.

Der Ionenimpuls die Summe der Impulse des ersten  $p_1$  und des zweiten Elektrons ( $p_2$ ). Je nach Orientierung des Vektorpotentials können sich die Beträge der Impulse des ersten und zweiten Ionisationsschrittes addieren ( $D_1=|p_1+p_2|$ ), falls das Vektorpotential zum Zeitpunkt des ersten und des zweiten Ionisationsschrittes in die selbe Richtung ausgerichtet war, oder teilweise kompensieren, falls die Vektorpotentiale zu den beiden Schritten in unterschiedliche Richtung zeigten ( $D_2=|p_1|-p_2|$ ). Darum bilden sich in der Impulsverteilung vier zur Hauptachse der Laserpolarisation symmetrische Maxima  $(-D_1, -D_2, D_2, D_1)$  aus. Ist die Differenz zwischen  $p_1$  und  $p_2$  klein, überlappen die beiden inneren Peaks und es sind nur drei Peaks zu erkennen. Die beiden äußeren Maxima ( $\pm D_1$ ) entsprechen der parallelen Emission der beiden Elektronen, die inneren Maxima ( $\pm D_2$ ) der antiparallelen Emission. Das Verhältnis der Zählrate zwischen den inneren und äußeren Maxima wird in Kap. 7.5 behandelt.

Die Entstehung der Vier-Peak-Struktur der Impulsverteilung lässt sich damit sehr einfach verstehen, wenn man sie als Faltung der zweier Einfachionisationsimpulsverteilung unterschiedlicher Halbachsen auffasst. Für den Fall, dass die Halbachsen der Ellipsen gleich groß wären, was bedeuten würde, dass die Ionisationsschritte bei sehr ähnlichen Intensitäten ablaufen, wird die Vier-Peak-Struktur zur Drei-Peak-Struktur, da sich die Impulse bei antiparalleler Emission genau aufheben. Die nahezu gleichzeitige Ionisation der einzelnen sequentiellen Ionisationsschritte ist bei den verwendeten 30fs-Pulsen sehr unwahrscheinlich. Die einzelnen Schritte laufen zeitlich getrennt ab, sodass unterschiedliche Intensitäten auf der zeitlichen Einhüllenden des Laserpulses zum Impuls beitragen. Zur Überlagerung kann es trotzdem kommen, wenn bei einer geringen Elliptizität der Unterschied der kleinen Halbachsen der zwei Ionisationsschritte klein gegen die Breite der Impulsverteilung longitudinal zur Laserpolarisationsrichtung ist, wie es für  $\epsilon = 0,26$  der Fall ist.

## 5.4 Dreifachionisation ( $n=3$ )

Die dritte Zeile von Fig. 5.2 zeigt die Impulsspektren von  $\text{Ne}^{4+}$ -Ionen nach Dreifachionisation von  $\text{Ne}^+$  zu  $\text{Ne}^{4+}$ . Auch hier liegt ein sequentieller Ionisationsmechanismus zu Grunde. Analog zur Entstehung der Ionenimpulsspektren nach Doppelionisation, lässt sich der Ionenimpuls nach sequentieller Dreifachionisation als Summe der Impulse von drei während des Ionisationsprozess emittierten Elektronen verstehen.

$$\vec{p}_{\text{Ion}} = -(\vec{p}_{e1} + \vec{p}_{e2} + \vec{p}_{e3}) \quad (5.3)$$

Im Fall der dreifach ionisierten Ionen tragen die Impulse von drei Elektronen  $(p_1, p_2, p_3)$  zum Ionenimpuls bei. Es ist daher für elliptische Polarisation eine Impulsverteilung mit  $2^3=8$  Maxima  $(-T_1, -T_2, -T_3, -T_4, T_4, T_3, T_2, T_1)$  zu erwarten, die auch wieder symmetrisch zur Hauptachse der Laserpolarisation ist. Bei mittleren Elliptizitäten ( $\epsilon=0,5$  und  $0,74$ ) sind sechs der acht Maxima zu erkennen. Das Verhältnis der Ionisationsenergien und der daraus folgenden Vektorpotentiale zum Ionisationszeitpunkt  $p_1, p_2, p_3$  bestimmt, wie gut sich die einzelnen Peaks abbilden lassen. Das Maximum mit der größten Auslenkung gehört zu

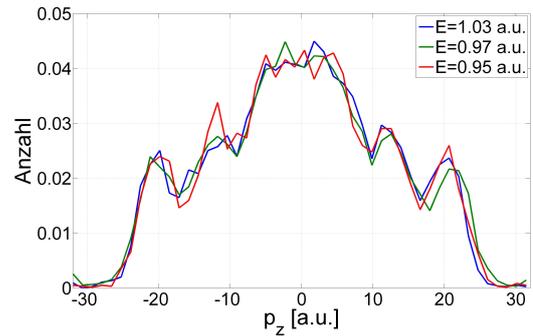


Abbildung 5.7: Projektion der Ionenimpulsspektren nach Dreifachionisation entlang der  $p_z$ -Achse.

$T_1=|p_1| + |p_2| + |p_3|$ , die zweitgrößte Auslenkung zum Fall  $T_2=-|p_1| + |p_2| + |p_3|$ . Für Neon fallen bei  $\epsilon=0,74$  die Maxima  $T_3 = +|p_1| - |p_2| + |p_3|$  und  $T_4=-|p_1| - |p_2| + |p_3|$  zusammen. Für fast zirkulare Polarisation verschwimmen die einzelnen Maxima zu einer radialsymmetrischen Verteilung. Für diese Elliptizität lassen sich daher nur schwierig Erkenntnisse über die Ionisationszeitpunkte ableiten. Die Information über den Winkelversatz, die für Einfach- und Doppelionisation auch bei  $\epsilon=0,95$  noch vorhanden ist, geht in der Dreifachionisation völlig verloren.

## 5.5 Vierfachionisation (n=4)

Für einige Elliptizitäten war die Messdauer lang genug, um auch Ereignisse für die vierfache sequentielle Ionisation von  $\text{Ne}^+$  zu  $\text{Ne}^{5+}$  zu detektieren. Die Impulsspektren der  $\text{Ne}^{5+}$ -Ionen sind in der vierten Zeile von Abb. 5.2 dargestellt. Der Ionenimpuls ist die Summe der Impulse der vier Elektronen.

$$\vec{p}_{Ion} = -(\vec{p}_{e1} + \vec{p}_{e2} + \vec{p}_{e3} + \vec{p}_{e4}) \quad (5.4)$$

Aufgrund der Kombination von vier Ionisationsschritten ( $P_1, P_2, P_3, P_4$ ) ist theoretisch eine Ionenverteilung mit  $2^4=16$  Maxima ( $Q_1$  bis  $Q_8$ ) zu erwarten. Eine solch große Anzahl von Maxima führt zur völligen Überlagerung und es sind keine einzelnen Maxima erkennbar. Es lässt sich aber für kleine Impulse ein Bereich höherer Zählrate erkennen, in dem mehrere Maxima zusammenfallen. Mit dieser Information und dem Wert der größten Ausdehnung der Impulsverteilung lassen sich auch aus den Spektren der vierfachen Ionisation Informationen über die einzelnen Schritte treffen. Wie auch bei der Dreifachionisation bleibt für die Vierfachionisation die Form der Ionenimpulsverteilung bei linearer Polarisation nahezu unverändert, nur ihre Ausdehnung entlang der Polarisationsachse steigt.

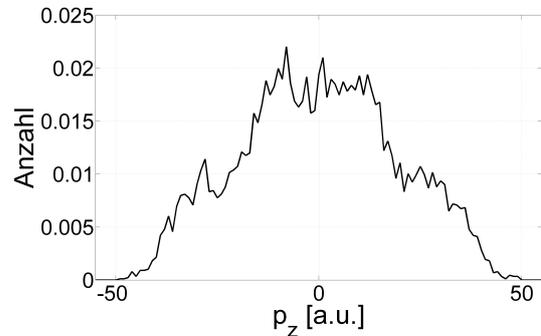


Abbildung 5.8: Projektion des Ionenimpulsspektrums nach Vierfachionisation entlang der  $p_z$ -Achse.

# Kapitel 6

## Rekonstruktion der Ionisationsdynamik

### 6.1 Überblick

Die Impulsverteilung der Ionen nach Einfachionisation entspricht aufgrund der Impulserhaltung genau der Impulsverteilung der Elektronen. Wie in Kap. 3.3 erläutert, können aus diesen Impulsverteilungen Informationen über die Feldstärke und den Zeitpunkt, zu welcher das Elektron ionisierte, gewonnen werden. Weiterhin ist die Verdrehung der Maxima der Zählrate gegenüber den Hauptachsen der Polarisierung als Konsequenz der komplexen Elektron-Atom-Wechselwirkung während des Tunnelprozesses von Interesse.

Für die mehrfache Ionisation sind diese Informationen auch in den Impulsspektren der Ionen enthalten (siehe Kap. 5). Im Gegensatz zur Einfachionisation sind sie jedoch nicht direkt zugänglich. Eine Rekonstruktion dieser Informationen liefert die Dynamik der Entstehung aller beobachteten Ladungszustände.

### 6.2 Elliptizitätskorrigierte Polarkoordinaten

Um die Impulsverteilungen nach elliptischer Polarisierung quantifizieren zu können, ist es sinnvoll, elliptizitätskorrigierte Polarkoordinaten einzuführen [17]. Dies entspricht folgender Transformation:

$$p_r = \sqrt{(\epsilon^2 + 1)/\epsilon^2 p_z^2 + (\epsilon^2 + 1)p_y^2} \quad (6.1)$$

$$p_\phi = \tan^{-1}((p_z/\epsilon)/p_y) \quad (6.2)$$

Diese Transformation sorgt dafür, dass die im allgemeinen elliptische Impulsverteilung auf eine Kreisform gestreckt wird. Dies geschieht, indem die kleine Halbachse der Polarisation mit dem Faktor  $1/\epsilon$  multipliziert wird, wofür der Wert  $\epsilon$  der Polarisation für die Berechnung möglichst genau bekannt sein muss. Damit erhält die transformierte Verteilung die Form eines Kreises und damit die zirkulare Symmetrie, die bei der Ionisation mit zirkularen Polarisation entsteht ( $\epsilon = 1$ ). Im Fall der zirkularen Elliptizität muss nicht mehr zwischen kleiner und großer Hauptachse der Polarisation unterschieden werden. Da für diesen Fall die Impulsverteilung unabhängig vom Winkel ist, folgt ein einfacher Zusammenhang zwischen dem Betrag des Impulses und dem Vektorpotential zur Zeit der Ionisation. Für zirkulare Polarisation und einen gaußförmigen Puls steigt der Betrag der elektrischen Feldstärke und damit auch der des Vektorpotentials bis zum Maxima monoton an und oszilliert nicht. Die Oszillation ist auf den Winkel beschränkt.

Es ist sinnvoll, in Polarkoordinaten überzugehen, da der Betrag des Impulses dann dem Radialanteil  $p_r$  entspricht (siehe Kap. 2). Da  $p_r$  in atomaren Einheiten damit gleich dem Vektorpotential ist, eignet sich diese Darstellung, um in der Einhüllenden des Betrages des Vektorpotentials die Ionisationsfeldstärke  $E(t_0) = p_r \omega$  und daraus die Ionisationszeit zu bestimmen (siehe Kap. 6.6).

Desweiteren entspricht der Winkel der elliptizitätskorrigierten Polarkoordinaten im einfachsten semiklassischen Modell der Laserphase zum Zeitpunkt der Feldoszillation. Die Richtung des Elektron- bzw. Ionenimpulses ist gleich der Richtung, in der das Vektorpotential zur Zeit der Ionisation zeigte. Der „Streaking“-Winkel steht damit in Relation zur Ionisationszeit innerhalb des Laserzyklus. Darauf beruht „Minute hand attoclock“. Zur einer Verschiebung des Schwerpunktes tragen jedoch noch weitere Effekte zur Verdrehung bei (siehe Kap. 7.2).

Es ist zu beachten, dass sich in den meisten Veröffentlichungen die Angaben für den Winkel der Verdrehung auf die nicht elliptizitätskorrigierten Koordinaten beziehen. Für Elliptizitäten  $\epsilon < 1$  unterscheidet sich dieser Winkel  $\theta$  offensichtlich vom Winkel  $p_\phi$ . Da der Zusammenhang zwischen den beiden verschiedenen Winkelangaben einfach ist, können bei Kenntnis der

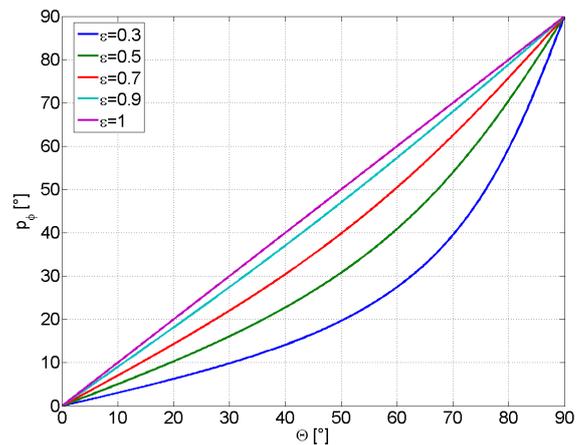


Abbildung 6.1: Zusammenhang zwischen dem nicht-elliptizitätskorrigierten Winkel  $\Theta$  und der elliptizitätskorrigierten Winkelangabe  $p_\phi$ .

Elliptizität die beiden Winkelangaben ineinander umgerechnet werden (siehe Fig. 6.1).

Die Transformation auf elliptizitätskorrigierte Koordinaten ermöglicht es, Messergebnisse verschiedener Elliptizitäten zu vergleichen. Dabei darf der Einfluss der Elliptizitätskorrektur auf die resultierende Verteilung nicht vergessen werden, da die Streckung entlang einer Koordinate die Breiten der Verteilung ändert. Die Impulsverteilungen in elliptizitätskorrigierten Koordinaten für verschiedene Elliptizitäten ist in Abb. 6.2 dargestellt.

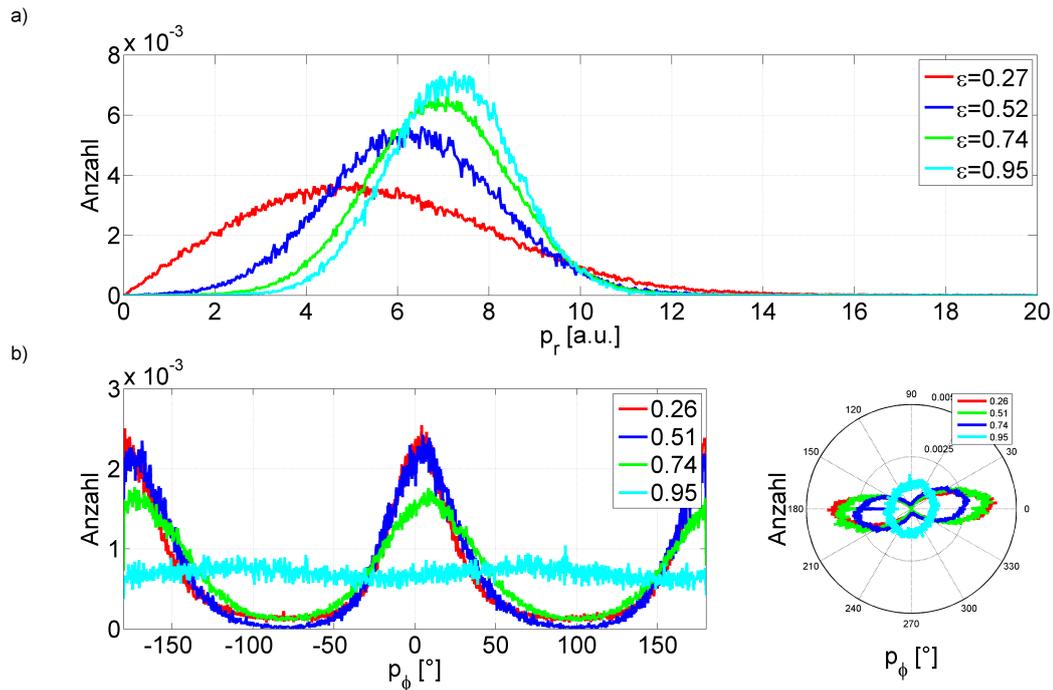


Abbildung 6.2: Histogramm der Impulsverteilung in elliptizitätskorrigierten Polarkoordinaten  $p_r$  und  $p_\phi$  für verschiedene Elliptizitäten der Laserpolarisation.

Weiterhin ist zu beachten, dass die Transformation für kleine Elliptizitäten  $\epsilon \approx 0$ , nicht sinnvoll ist. Für lineare Polarisation gibt es nur ein gaußförmiges Maxima in der Impulsverteilung um  $(0,0)$  in den kartesischen Impulskoordinaten. Solange die zwei Maxima, die für elliptische Polarisation aufgrund der zwei Möglichkeiten für die Emissionsrichtung des Elektrons auftreten, nicht trennbar sind, ist eine Transformation daher nicht möglich.

Ein Vorteil der elliptizitätskorrigierten Polarkoordinaten ist, dass in ihnen eine Impulsverteilung nach Einzelionisation sehr gut durch Gaußfunktionen entlang der beiden Polarkoordinaten  $p_r$  und  $p_\phi$  approximiert werden kann (siehe Fig. 6.3).

### 6.3 Notation der Mehrfachionisationsschritte

Wie in Kap. 5 berichtet, wurden bei der Ionisation von  $\text{Ne}^+$ -Ionen alle höheren Ladungszustände der Einfach- bis Vierfachionisation, von  $\text{Ne}^{2+}$  bis  $\text{Ne}^{5+}$  in einer gemeinsamen Messung detektiert. Die in verschiedenen Intensitätsbereichen des Laserfokus erzeugten Ladungszustände sind völlig unabhängig voneinander entstanden. Damit müssen auch die einzelnen Ionisationsschritte unterschieden werden. So findet sich der erste Ionisationsschritt von  $\text{Ne}^+$  nach  $\text{Ne}^{2+}$  in der Entstehung aller dieser verschiedenen finalen Ladungszustände. Da dieser Schritt in verschiedenen Bereichen des Fokus auftrat, unterscheidet sich der zeitliche Verlauf der Laserfeldstärke und damit sowohl die Ionisationszeit als auch der im ersten Ionisationsschritt übertragene Impuls. Das gleiche gilt für die höheren Ionisationsschritte bis zu  $\text{Ne}^{4+}$  nach  $\text{Ne}^{5+}$ , der den höchsten beobachteten Ladungszustand darstellt.

Um diese verschiedenen Ionisationsschritte in Beziehung zu dem finalen Ladungszustand zu unterscheiden, wird im folgenden eine einfache Bezeichnung aus drei Ziffern verwendet. Die ersten beiden Ziffern zeigen den Ionisationsschritt an. Die erste Ziffer ist der Ladungszustand des Ausgangsions und die zweite der Ladungszustand nach dem betrachteten Schritt. Die dritte Ziffer weist auf den finalen Ladungszustand hin.

Damit deutet die Bezeichnung „123“ auf den Ionisationsschritt von  $\text{Ne}^+$  nach  $\text{Ne}^{2+}$  aller Ionen, die am Ende des Laserpulses als  $\text{Ne}^{3+}$ , dem Ion nach der Doppelionisation, vorliegen.

### 6.4 Entfaltung der Impulsspektren

Im Fall der sequentiellen Mehrfachionisation entspricht der Impuls des Ions der Summe der Impulse aller während der mehrfachen Ionisation emittierten Elektronen (siehe Kap. 5). Aufgrund dieser Kombination stellen die Ionenverteilungen nach Mehrfachionisation aus geometrischer Sicht eine Faltung der verschiedenen Verteilung von Einzelionisationsschritten dar, die den Impulsverteilungen der Elektronen entsprechen. Die Information über diese Einzelionisationsschritte ist in dem Ionenspektrum enthalten, aber nicht direkt zugänglich.

Um Zugang zu diesen Informationen zu erlangen, ist eine Entfaltung der Ionenimpulsverteilungen nötig. Dazu kommt eine Entfaltungsmethode zum Einsatz, die auf Annahmen bezüglich der Form der Einzelionisationsschritte beruht.

#### Einfachionisation

Es wurde festgestellt, dass das Impulsspektrum eines Einfachionisationsschritt sehr gut durch Gaußfunktionen in den elliptisch korrigierten Koordinaten  $p_\phi$  und  $p_r$  approximiert werden

kann (siehe Kap. 6.2). Die Fig. 6.3 zeigt die Histogramme entlang dieser Koordinaten und die Kurvenanpassungen mit einer Gaußfunktion, die den Verlauf der Histogramme sehr gut nachbilden. Eine zweidimensionale Funktion, die die Impulsverteilung der Einfachionisation in der Laserpolarisationsebene beschreibt, ergibt sich damit zu

$$F_{\text{Single}}(p_r, p_\phi) = \frac{1}{p_r} e^{-\left(\frac{p_r - p_{r0}}{\Delta p_{r0}}\right)^2} \cdot e^{-\left(\frac{p_\phi - p_{\phi0}}{\Delta p_{\phi0}}\right)^2}. \quad (6.3)$$

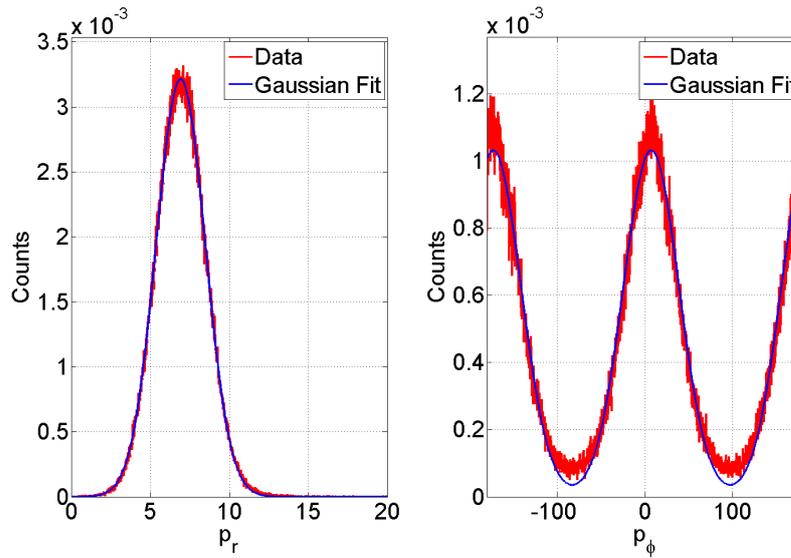


Abbildung 6.3: Histogramm eines Einfachionisationsschrittes (Siehe Abb. 5.2) in den elliptizitätskorrigierten Koordinaten  $p_\phi$  und  $p_r$ .

Damit charakterisiert folgender Set von Parametern einen Einzelionisationsschritt:

- Mittlerer radialer Impuls  $p_{r0}$
- Breite im radialen Impuls  $\Delta p_{r0}$
- Elliptizität  $\epsilon$
- Breite in Winkel  $\Delta p_{\phi0}$
- Rotationsoffset  $p_{\phi0}$  des Maximums der Zählrate relativ zur Laserpolarisationsachse in elliptisch korrigierten Koordinaten

Der Faktor  $1/p_r$  ergibt sich aus dem geänderten Flächenelement in den Polarkoordinaten. Diese Funktion,  $F_{\text{Single}}$ , wird zur Beschreibung eines Einfachionisationsschrittes mit der Methode der kleinsten Quadrate (engl.: method of least squares) an die gemessene Impulsverteilung angefitet.

## Doppelionisation

Die Ionenimpulsverteilungen nach Doppelionisation kann durch eine Faltung von zwei Funktionen eines Einzelionisationsschritten aus Gl. 6.3 mit zwei unterschiedlichen Parametersets beschrieben werden.

$$F_{\text{Double}} = F_{\text{Single1}} * F_{\text{Single2}} \quad (6.4)$$

Diese beiden Verteilungen entsprechen den Elektronenimpulsverteilungen des ersten und zweiten ionisierten Elektrons (siehe Abb. 6.4). Die Faltung der beiden Verteilungen stellt im Ortsraum eine Addition der Einzelimpulse des ersten und zweiten Schrittes dar

$$F_{13}(p_r, p_\phi) = F_{123}(p_r, p_\phi) * F_{233}(p_r, p_\phi). \quad (6.5)$$

Zur Implementierung der Fitfunktion bei hoher numerischer Geschwindigkeit der Auswertung bietet sich an, die Faltung im Frequenzraum durchzuführen. Dann kann die Faltung als einfache elementweise Multiplikation der beiden 2-D-Verteilungen der Einzelionisationsschritte berechnet werden

$$F_{\text{Double}} = \mathcal{F}^{-1}(\mathcal{F}(F_{\text{Single1}}) \cdot \mathcal{F}(F_{\text{Single2}})). \quad (6.6)$$

Aus dem Fit werden folglich zwei Sets von Fitparametern,  $p_{r123}$ ,  $\Delta p_{r123}$ ,  $p_{\phi123}$ ,  $\Delta p_{\phi123}$  und  $p_{r233}$ ,  $\Delta p_{r233}$ ,  $p_{\phi233}$ ,  $\Delta p_{\phi233}$ , ermittelt. Der Vergleich von gemessener Impulsverteilung und der Verteilung, die durch die Fitfunktion erstellt wurde, zeigt eine bemerkenswerte Übereinstimmung (siehe Abb. 6.4). Die Größe des mittleren Impulses  $p_{r1}$  und  $p_{r2}$  aus der 2D-Verteilung der Doppelionisation zu bestimmen, gelingt sehr gut. Eine größere Schwierigkeit stellt jedoch die Bestimmung der Breiten  $\Delta p_{r1}$  bzw.  $\Delta p_{r2}$  dar. Betrachtet man die Faltung zweier Gaußverteilungen mit  $\Delta x_{1,2}$  in einer Dimension, besitzt die Faltung wieder die Form einer Gaußverteilung mit der Breite  $\sqrt{\Delta x_1^2 + \Delta x_2^2}$ . Es ist somit nicht möglich, aus der Faltung Information über das Verhältnis der einzelnen Breiten  $\Delta x_{1,2}$  zu erlangen. Dies überträgt sich auch auf den zweidimensionalen Fall der gesuchten Breiten  $\Delta p_{r1,2}$ , deren Werte mit der Fitmethode folglich nicht verlässlich zu bestimmen sind. Es kann nur eine Aussage über die Summe der Breiten getroffen werden. Nur unter weiteren Annahmen, wie z.B. über Skalieren der Breiten mit dem Verhältnis von  $p_{r1,2}$  oder das Übernehmen der Breite aus dem entsprechenden Einfachionisationsschritt können die Breiten besser bestimmt werden.

Der Erfolg der Entfaltung hängt stark von der Qualität der Messung ab. Ist die Anzahl der gemessenen Ionenimpulse höher, kann die Berechnung des zweidimensionalen Impulshistogramms und die Auswertung der Fitfunktion auf einem feineren Gitter simuliert werden und das Ergebnis der Entfaltung wird zuverlässiger.

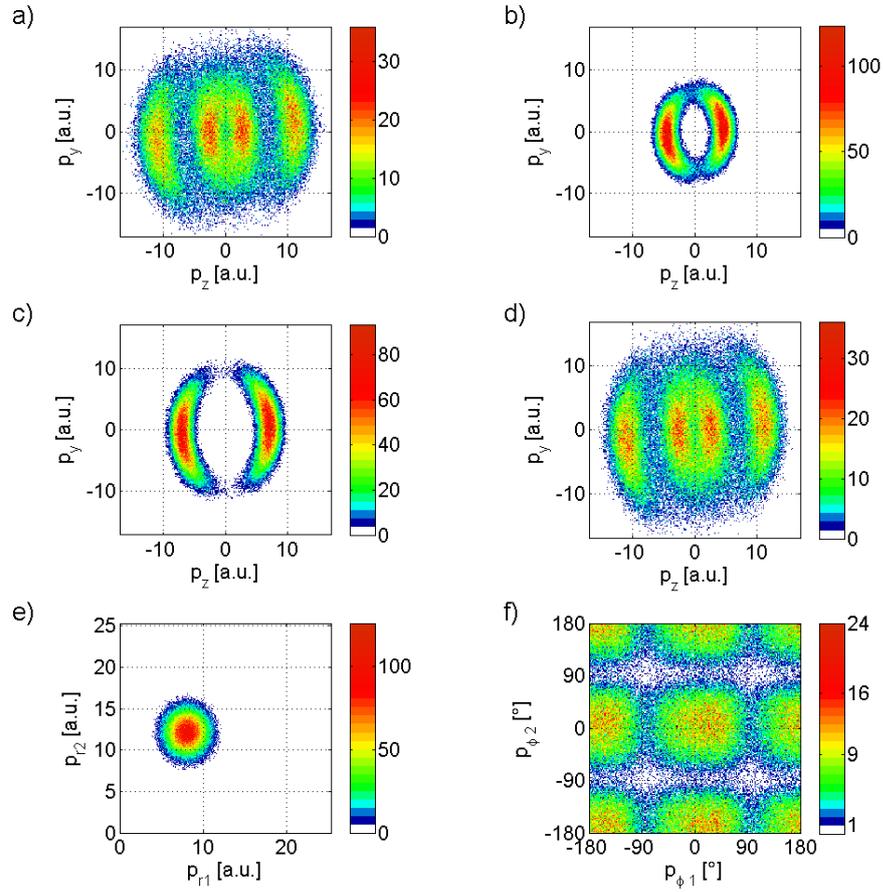


Abbildung 6.4: Beispiel der Fitmethode für Doppelionisation: a) Gemessene Impulsverteilung, b) Ergebnis der Fitfunktion für die Impulsverteilung des ersten Ionisationsschrittes und c) Impulsverteilung des zweiten Ionisationsschrittes, d) Ergebnis der Doppelionisationsfitfunktion (entspricht einer Faltung von b) und c) ), e) Korrelationsdiagramm der normierten radialen Impulse des ersten und zweiten Schrittes , f) Korrelationsdiagramm des Emissionswinkels des ersten und zweiten Elektrons

## Mehrfachionisation

Der Methode funktioniert durch Hinzufügen weiterer Ionisationsschritte auch für die Dreifach- und Vierfachionisation

$$F_{\text{Triple}} = F_{\text{Single1}} * F_{\text{Single2}} * F_{\text{Single3}} \quad (6.7)$$

$$F_{\text{Quad}} = F_{\text{Single1}} * F_{\text{Single2}} * F_{\text{Single3}} * F_{\text{Single4}}. \quad (6.8)$$

Die Entfaltung wird jedoch aus mehreren Gründen immer unzuverlässiger. Erstens wird mit jedem Schritt die Form der Impulsverteilung komplexer. Dies ist gleichbedeutend mit einem Anstieg der Zahl der Fitparameter, die aus der gemessenen Impulsverteilung gewonnen werden müssen. Zweitens nimmt aufgrund der höheren Ionisationspotentiale der höheren Io-

nisationsschritte die Zählrate mit jedem Ionisationsschritt stark ab. Die geringere verfügbare Statistik und die größere Anzahl von Fitparametern erhöhen die Unsicherheit deutlich. Dies gilt insbesondere für die Bestimmung des Winkels  $p_\phi$ . Die Ermittlung des mittleren Impulses  $p_r$  kann durch geeignete Wahl des Parameterraumes auch noch für die höheren Ladungszustände erfolgen. Wie oben beschrieben kommt es z.B. bei der Dreifachionisation zur teilweisen Überlagerung der Maxima. Dies erschwert die Entfaltung zusätzlich.

Ein kritischer Parameter der Entfaltung ist die Elliptizität der Laserpolarisation. Die Elliptizität kann ebenfalls als Fitparameter aus der Impulsverteilung ermittelt werden. Um die Anzahl der Fitparameter nicht unnötig zu erhöhen, wird die Elliptizität der Impulsverteilung jedoch auf den Wert der gemessenen Elliptizität der verwendeten Laserpolarisation festgesetzt. Da die Ionisationswahrscheinlichkeit exponentiell von der Feldstärke abhängt, ist dies jedoch nur näherungsweise der Fall. Zur gemessenen Impulsverteilung tragen Ionen bei, die in drei bis fünf optischen Zyklen und damit zu unterschiedlichen Intensitäten ionisiert wurden (siehe Abb. 6.10). Ionen, die auf der elliptischen Impulsverteilung auf der kleinen Halbachse liegen, wurden innerhalb der optischen Zyklen am Maxima der absoluten elektrischen Feldstärke ionisiert. Ionen die auf der großen Halbachse der Impulsverteilung registriert werden, wurden innerhalb der optischen Zyklen an den Minima der absoluten elektrischen Feldstärke ionisiert. Da die Ionisationswahrscheinlichkeit bei den höheren Feldstärken offensichtlich höher ist, ist anzunehmen, dass die Ionen auf der langen Halbachse der Impulsverteilung im Mittel aus einem späteren Zeitpunkt im Puls mit einer höheren Feldstärke stammen als die Ionen, die auf der kurzen Halbachse der Impulsverteilung registriert werden. Somit sollten die Impulse auf der langen Halbachse der Polarisation zu höheren Werten verschoben sein, sodass die Elliptizität der gemessenen Verteilung kleiner sein müsste, als die gemessene Elliptizität der Laserpolarisation.

Dieser Effekt auf die Elliptizität wird jedoch als gering eingeschätzt, sodass es gerechtfertigt ist, den experimentellen Wert der Elliptizität für die Entfaltung zu verwenden. Der Polarisationszustand des Laserlichtes wird im Experiment durch Drehung eines Polarisationswürfels vor einem Powermeter gemessen. Es ist zu beachten, dass diese Messung auch einen Fehler besitzt. Aus dieser Ellipsometriemessung wird ebenfalls der Winkel  $\beta$  bestimmt, um den die  $\lambda/4$ -Platte die Hauptachse der Laserpolarisation und damit der Ionenimpulsverteilung dreht. Der Winkel  $\beta$  ist zur Bestimmung der Verdrehung der Zählratenmaxima der Impulsverteilung relativ zur Laserpolarisationsachse sehr wichtig. Dieser Wert  $\beta$  kann nur mit einer bestimmten Messgenauigkeit bestimmt werden und trägt entscheidend zur Unsicherheit der Ergebnisse bei.

Die beschriebene Fitmethode ermöglicht aus den Impulsverteilungen der Ionen Informatio-

nen über die Ionisation der Elektronen nach Mehrfachionisation zu gewinnen, die nicht direkt zugänglich sind. Im Gegensatz zu COLTRIMS-Experimenten können bei der Ionenstrahlapparatur die Elektronen nicht detektiert werden. Die Elektronen besitzen im Vergleich zu den Ionen nach der Ionisation einen bis auf das Vorzeichen identischen Driftimpuls. Sie erfahren aber wegen  $m_{\text{Ion}} \gg m_e$  eine viel höhere Geschwindigkeit. Die aus diesem Grunde um Größenordnungen stärkere Ablenkung verhindert ein direktes Auftreffen der Elektronen auf dem selben Detektor, mit dem die Ionen registriert werden.

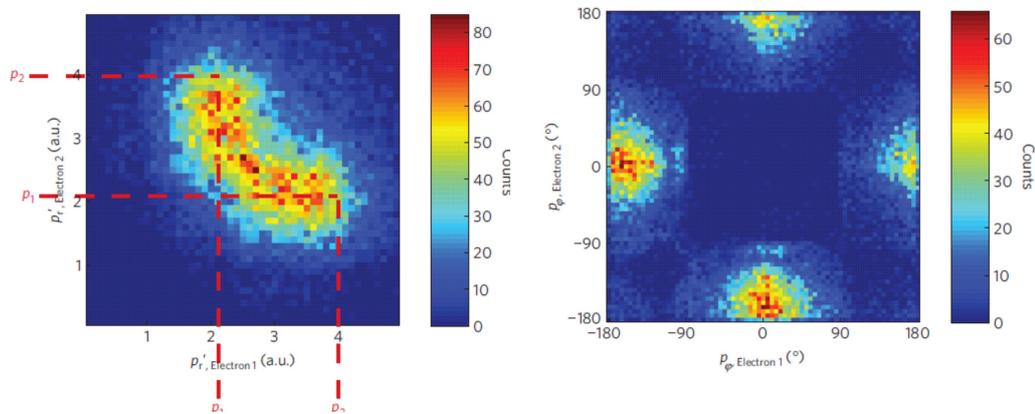


Abbildung 6.5: Korellationsdiagramm für normierten radialen Impulses des ersten und zweiten Elektrons, unten: Korrelationsdiagramm des Emissionswinkels des ersten und zweiten Elektrons, entnommen aus [10]. Zu beachten ist, dass für die Symmetrie des oberen Diagramm daraus folgt, dass keine direkte Möglichkeit besteht, herauszufinden, welches das erste und welches das zweite Elektron ist, sodass beide Möglichkeiten angenommen wurden. Für das unter Diagramm ist zu beachten, dass die Elektronenimpulse für parallele Elektronenemission bei  $(0^\circ, 0^\circ)$  und  $(\pm 180^\circ, \pm 180^\circ)$  nicht detektiert werden konnten.

Mit der Nutzung der beschriebenen Fitfunktion zur Entfaltung der Ionenverteilungen können die Impulse der Elektronen rekonstruiert werden. Dies ermöglicht die Untersuchung der Korrelation in der Ionisationszeiten der Elektron im Prozess der sequentiellen Ionisation. Exemplarisch ist dies für die Doppelionisation in Fig. 6.4 gezeigt. Die Ergebnisse können mit den Messungen der Experimente von Pfeiffer *et al.* [10] verglichen werden (Siehe Abb. 6.5). Die Korrelation wurde mit den Messdaten eines COLTRIMS-Experimentes untersucht. Dabei können aber aufgrund der begrenzten Zeitaufösung nicht alle Elektronen detektiert werden. Für den Fall der parallelen Elektronenemission in der Doppelionisation treffen die beiden Elektronen mit zu kurzem zeitlichen Abstand auf den Detektor, sodass die Auftreffzeit der beiden Elektronen nicht eindeutig bestimmt werden kann.

Des weiteren müssen bei Koinzidenzmessungen die Zählraten sehr gering gehalten werden, um falsche Koinzidenzen zu vermeiden [11, 13]. Da die Detektionseffizienz nur ca.  $\eta \approx 30\%$  beträgt,

sinkt die Wahrscheinlichkeit für eine Koinzidenzdetektion mit der Anzahl  $n$  der zu messenden Teilchen mit  $P = \eta^n$ . Die Messung von Mehrfachionisationsereignissen in Koinzidenz ist damit sehr aufwendig.

## 6.5 Ergebnisse der Fitmethode

Die im letzten Kapitel vorgestellte Fitmethode wurde auf die in Kap. 5 beschriebenen Impulsverteilungen angewendet.

### Einfachionisation

Mit der zweidimensionalen Fitfunktion (siehe Gl. 6.3) für einen Einfachionisationsschritt werden neben dem mittleren übertragenen Impuls auch die Breite entlang der beiden elliptizitätskorrigierten Polarkoordinaten sowie die Verdrehung der Maxima der Zählrate gegenüber der Polarisationsachse bestimmt.

Die Abhängigkeit des übertragenen Impulses von der Intensität wurde schon in Kap. 5.2 diskutiert und ist in Abb. 6.7 für  $p_{r0}$  im Vergleich mit dem Ergebnissen der Doppelionisation gezeigt. Der Wert  $p_{r0}$  steigt mit der Intensität an und bleibt konstant, wenn die Einfachionisation in Doppelionisation übergeht. Die Ergebnisse der Verdrehung werden in Kap. 7.2 diskutiert.

In Abb. 6.6 ist die Breite der Impulsverteilung entlang  $p_r$  und  $p_{\phi 0}$  in Abhängigkeit von  $p_{r0}$  dargestellt. Der Wert von  $p_{r0}$  ist proportional zur Feldstärke zum Ionisationszeitpunkt. Um die Abhängigkeiten von der Stärke des elektrischen Feldes darzustellen, ist  $p_{r0}$  besser geeignet als der Wert der Peakintensität im Laserfokus. Die Peakintensität ist nur die Intensität im Zentrum des Fokus und am zeitlichen Peak des Laserpulses. Sie gibt damit keine genaue Angaben über Ort und Zeitpunkt der Ionisation.

Die Breite der Impulsverteilung in radialer Richtung  $\Delta p_r$  steigt mit der Ionisationsfeldstärke. Die Breite  $\Delta p_r$  steht im Zusammenhang zu der Breite der Verteilung der Anfangsimpulse der Elektronen am Tunnelausgang, für die Gl. 2.33 ein Anstieg mit der Feldstärke vorhersagt.

Die Breite der Winkelverteilung  $p_{\phi 0}$  der Impulsverteilung zeigt ebenfalls ein deutlich ansteigendes Verhalten. Grund dafür ist, dass für hohe Feldstärken auch die Stärke des elektrischen Feldes entlang der kleinen Achse der Polarisationsellipse stärker zur Ionisation beiträgt.

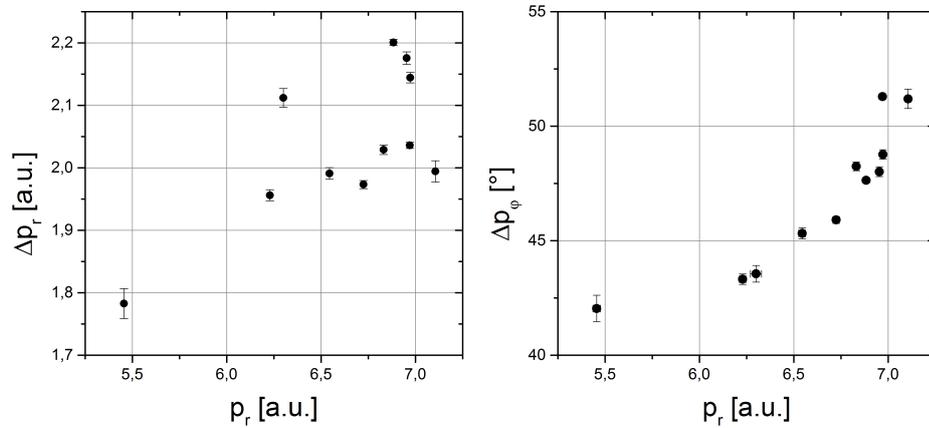


Abbildung 6.6: Ergebnis für die Parameter  $\Delta p_r$  und  $\Delta p_\phi$  der gaußförmigen Fitfunktion aus G. 6.3 für die Einfachionisation in Abhängigkeit des mittleren radialen Impulses.

## Doppelionisation

Die Funktion aus Gl. 6.4 ermöglicht es, den mittleren Impuls des Elektron aus dem ersten Ionisationsschritt 123 und den Impuls des im zweiten Schritt 233 ionisierten Elektrons zu rekonstruieren. Das Ergebnis ist in Abhängigkeit der Spitzenintensität in Abb. 6.7 im Vergleich mit der Einfachionisation dargestellt. Der im Schritt 123 übertragene mittlere Impuls ist höher als der mittlere Impuls in der Einfachionisation 122. Der Wert des Impulses aus dem Schritt 123 steigt über den Intensitätsbereich nur wenig an. Der im Schritt 233 übertragene Impuls steigt erst an und bleibt ab den Intensitäten, die zur Dreifachionisation führen, nahezu konstant. Dieser Verlauf ist vergleichbar mit dem Verhalten des Einfachionisationsschrittes 122.

Für die Breiten der Impulsverteilungen entlang  $p_r$  und  $p_{\phi 0}$  der beiden Ionisationsschritte 123 und 233 können keine zuverlässigen Angaben gemacht werden, da die Fitmethode nicht in der Lage ist, die Breiten der Mehrfachionisation zu bestimmen (siehe Kap. 6.4).

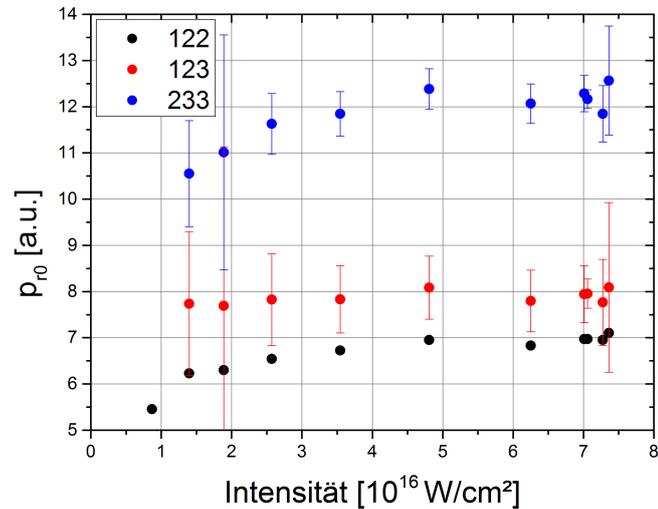


Abbildung 6.7: Mittlerer radialer Impuls des Einfachionisationsschrittes 122 und der beiden Ionisationsschritte 123 und 233 in Doppelionisation in Abhängigkeit der Spitzenintensität.

### Dreifachionisation

Die Anwendung der Fitmethode für die Dreifachionisation weist aufgrund der größeren Anzahl von Fitparametern eine größere Unsicherheit auf. Das Ergebnis für den mittleren Impuls der beiden letzten Schritte 234 und 344 ist in Abb. 6.8 gezeigt. Der im zweiten Schritt der Dreifachionisation 234 übertragene Impuls ist größer als der letzte Schritt 233 der Doppelionisation. Diese Regelmäßigkeit folgt daraus, dass die  $n$ -fache Ionisation in einem Bereich des Fokus stattfindet, in dem die Intensität gerade ausreicht, um  $n$ -fach zu ionisieren, aber noch nicht den nächsten Ladungszustand zu ionisieren. Folglich tragen nur diesen Intensitäten entsprechende Feldstärken bzw. Vektorimpulse bei. Reicht die Intensität aus, um das nächste Elektron zu entfernen, ist der vorangegangene Ladungszustand völlig entleert und es tragen im Mittel größere Intensitäten bzw. Feldstärken zum mittleren Impuls bei.

Der Anstieg des übertragenen Impulses im letzten Ionisationsschritt, der für die Einfach- und Doppelionisation auftrat, ist für den Schritt 344 der Dreifachionisation nicht zu erkennen. Für die Dreifachionisation konnten jedoch nur wenige Intensitätspunkte gemessen werden und der erste Messpunkt der Datenreihe für 344 besitzt aufgrund der niedrigen Zählrate einen großen Fehlerbalken.

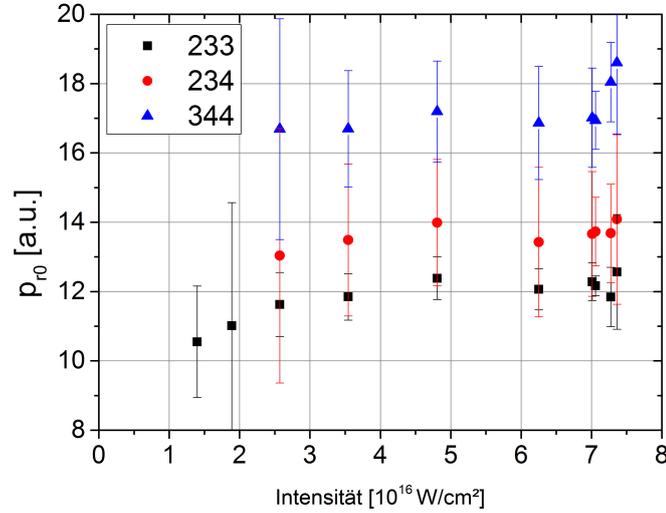


Abbildung 6.8: Mittlerer radialer Impuls des zweiten Doppelionisationsschrittes und der beiden Ionisationsschritte 234 und 344 der Dreifachionisation in Abhängigkeit der Spitzenintensität. Der Schritt 124 wird zur Übersichtlichkeit nicht dargestellt, da er sich ähnlich dem Ionisationsschritt 123 (siehe Abb. 6.7) verhält.

## 6.6 Bestimmung der Ionisationszeitpunkte

Wie in Kap. 3.3 erklärt wurde, kann über die Impulse der Elektronen nach der Ionisation die Ionisationszeit in der zeitlichen Einhüllenden des Laserpulses bestimmt werden. Die im vorherigen Kapitel eingeführte Fitmethode ermöglicht den mittleren Impuls, der in jedem Ionisationsschritt der Mehrfachionisation übertragen wurde, zu ermitteln. Unter der Annahme einer gaußförmigen Einhüllenden des Laserpulses kann die Ionisationszeit bestimmt werden [10]. Dabei wird zusätzlich angenommen, dass die Ionisation vor dem Peak des Laserpulses stattfindet.

Unter der Annahme, dass der letzte Ionisationsschritt zu dem beobachteten Ladungszustand in der Nähe des Laserpulsmaximums ionisiert, kann der in diesem Ionisationsschritt übertragene Impuls als Maximum des Vektorpotentials des Laserpulses angenommen werden. Für die anderen Ionisationsschritte kann aus den Impulsen  $p_{ri}$  der Ionisationszeitpunkt  $t_i$  aus der Form der gaußförmigen Einhüllenden des Laserpulses  $A(t) = A_0 e^{-2 \ln 2 (\frac{t}{\tau})^2}$  bestimmt werden, sodass gilt

$$t_i = -\tau \sqrt{\frac{1}{2 \ln 2} \ln \left( \frac{A_0}{p_{ri}} \right)}. \quad (6.9)$$

Zur Bestimmung muss die Pulslänge  $\tau$  bekannt sein und im Experiment mit möglichst hoher Genauigkeit bestimmt werden.

Das Ergebnis der Bestimmung der Ionisationszeitpunkte für eine Messung ist in Abb. 6.9 dargestellt. Dabei wurde entsprechend der Erläuterungen aus Kap. 6.3 zwischen den verschiedenen Ionisationsmöglichkeiten, die in einem Laserfokus auftreten, unterschieden.

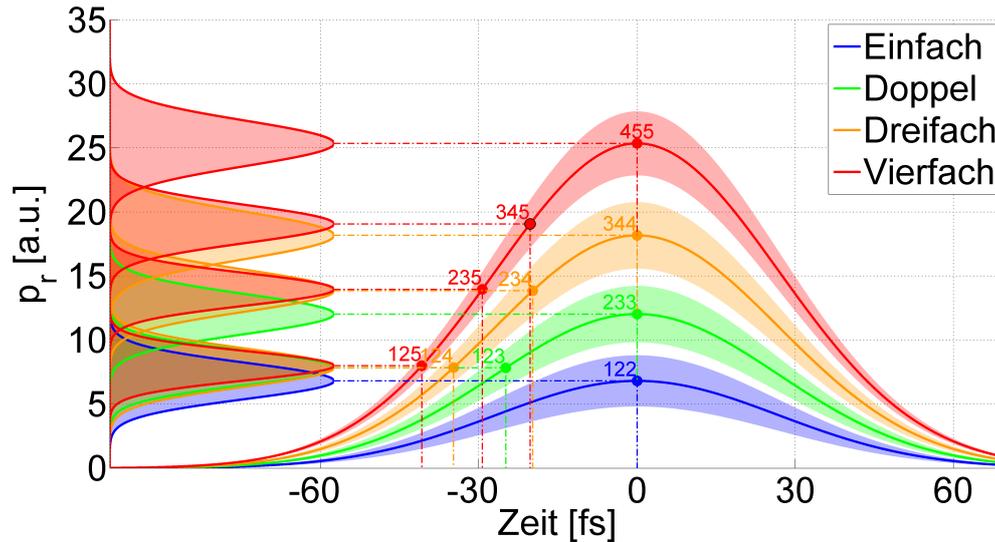


Abbildung 6.9: Bestimmung der Ionisationszeiten über den Wert des radialen Impulses  $p_{r,0}$  für alle Ionisationsschritte von Einfach-, Doppel-, Dreifach- und Vierfachionisation. Es wurde ein gaußförmiger Puls mit einer Pulsdauer von 37 fs angenommen. Die maximale Intensität im Fokus betrug ungefähr  $7,4 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$ .

Der Vergleich der Ionisationszeiten zeigt, dass Elektronen, die im gleichem Ionisationsschritt ionisiert werden, aber aus unterschiedlichen Bereichen des Laserfokus stammen, unterschiedliche Impulse im Laserfeld erhalten. Je höher der endgültige Ladungszustand aus dem Bereich, desto größer ist auch der Impuls. Dies zeigt die Abhängigkeit der Ionisationszeit vom zeitlichen Verlauf der Einhüllenden, insbesondere vom Anstieg der Feldstärke an der ansteigenden Flanke im Laserpuls.

Die Annahme, dass der höchste Ladungszustand die maximale Feldstärke des betrachteten Laserpulses angibt, ist eine Approximation. Sie ist jedoch nicht geeignet, um die Intensitätsabhängigkeit der Ionisationszeitpunkte zu untersuchen. Wie in Kap. 6.5 dargestellt, gibt es Intensitätsbereiche, über die der Wert des mittleren übertragenen Impulses nicht steigt, obwohl die Intensität erhöht wurde.

Um die Abhängigkeit der Ionisationszeiten von der maximalen Intensität zu zeigen, müssen die Intensitäten aus der Fokusgeometrie ermittelt werden. Wie beschrieben, wurde die maximale Intensität bei der Überlagerung des Ionenstrahls mit dem Laserfokus variiert, indem

die Position des Fokus aus dem Zentrum des Ionenstrahles heraus bewegt wurde. Dadurch ändert sich neben der maximalen Intensität zusätzlich auch die Form des zur Ionisation beitragenden Fokusvolumens. Aufgrund der begrenzten Genauigkeit dieser Methode werden im nächsten Kapitel nur die mittleren Impulse und nicht die Ionisationszeiten mit Simulationen verglichen.

Die Bestimmung der Ionisationszeiten in mehrfacher Ionisation ist von Bedeutung, um das Verständnis des Ionisationsvorganges zu verbessern und die Korrelation in der Ionisation zu untersuchen. Die genauen Ionisationszeitpunkte sind z.B. auch interessant für die Plasmaphysik. Bei der Wechselwirkung von Materie mit intensiven Femtosekundenlaserpulsen relativistischer Intensitäten bestimmt die Ionisationsdynamik wesentliche Kenngrößen des Experimentes, wie die Elektronen- bzw. Plasmadichte und Plasmatemperatur. Zur korrekten Interpretation dieser Experimente ist die Kenntnis der zugrunde liegenden Ionisationsdynamik wichtig.

## 6.7 Vergleich mit Simulationen

Um die Ergebnisse der vorgestellten Fitmethode und der Rekonstruktion der Ionisationszeiten einordnen zu können, ist ein Vergleich mit theoretischen Vorhersagen über den Ionisationsprozess nötig. Die komplexe dreidimensionale Interaktion eines Multielektronensystems wie Neon mit einem intensiven Laserpuls kann weder durch analytische Berechnung noch durch numerische Lösungen der Schrödingergleichung durchgeführt werden.

### Monte-Carlo-Simulation

Eine Möglichkeit besteht darin, das semiklassische Modell der Starkfeldphysik in eine Monte-Carlo-Simulationen zu implementieren (siehe Kap. 2). Dabei werden die Trajektorien der Elektronen durch numerische Lösung der klassischen Bewegungsgleichung berechnet (siehe Gl. 2.1). Die Impulsverteilung wird durch Berechnung eines Ensembles einer großen Anzahl von Elektronentrajektorien ermittelt.

Die Herausforderung besteht darin, ein klassisches Ensemble für die Startzeiten  $t_0$  und geeignete Verteilungen für die Anfangsgeschwindigkeit und Startorte der klassischen Elektronenbahn zu finden.

Entsprechend der in Kap. 2.3 vorgestellten Modelle können verschiedene Approximationen der quantenmechanischen Dynamik in eine Monte-Carlo-Simulationen implementiert werden. Um den zeitlichen Ablauf der Mehrfachionisation, die sich durch den Wert des übertragenen Impulses manifestiert, zu untersuchen, reicht der einfachste Ansatz aus. Dabei wird der

Impuls über das Vektorpotential zum Zeitpunkt der Ionisation berechnet. Um die mittleren Ionisationszeiten mit dem Experiment zu vergleichen ist diese Approximation gerechtfertigt. Die Bestimmung der Ionisationszeitpunkte aus den Impulsverteilungen hängt vom Betrag des Impulses ab. Wechselwirkungen der Elektrontrajektorie mit dem Atom- oder Multielektronenpotential bewirken vor allem eine Winkeländerung und können daher hier vernachlässigt werden.

Die Mehrfachionisation wird in der Simulation als rein sequentieller Prozess behandelt. Dass bedeutet, der Ionenimpuls ergibt sich aus die Summe der Impulse, der in der Mehrfachionisation emittierten Elektronen. Diese Simulation vernachlässigt Elektron-Elektron-Korrelationen sowie Elektron-Ion-Wechselwirkungen. Im Modell der sequentiellen Ionisation ist eine Korrelation der Elektronen damit nicht berücksichtigt. Die Simulationen basieren auf der in Matlab implementierten Monte-Carlo-Simulation von Max Möller.

Um das Experiment möglichst genau abzubilden, werden in der Monte-Carlo-Simulation die Laserparameter wie Pulsdauer, Pulsenergie und Fokusgröße entsprechend der experimentellen Messwerte gewählt. Die Intensitätsmittelung über das Fokusvolumen wird entlang der Polarkoordinaten  $r$  und  $\phi$  berücksichtigt. Dies ist gerechtfertigt, wie ein Vergleich von Ionenstrahlgröße und Fokusgeometrie zeigt (siehe Abb. 5.1). Die im gaußschen Laserfokus auftretenden Intensitäten werden mit ihrer entsprechenden Ionisationswahrscheinlichkeit gewichtet [50].

Die absolute Phase des Laserfeldes war im Experiment nicht stabilisiert und wurde daher in den Simulationen als zufällig angenommen.

### **Ionisationsrate**

Ein kritischer Punkt in der Simulation ist die Berechnung der Ionisationsrate. Die Erzeugung der Ionisationszeitpunkte der verschiedenen Ladungszustände in der Monte-Carlo-Simulation folgt der quasistatischen Tunnelrate und den Ratengleichungen aus Kap. 2.2 (siehe Abb. 6.10). Die damit berücksichtigte Entleerung der Population des Ausgangsions verschiebt die Ionisationszeit zum Beginn der Laserpulses.

An dieser Stelle können nur einfache Vergleiche der Messergebnisse gezeigt werden. Statt des Vergleiches der Ionisationszeiten wird der Vergleich der mit der Ionisation gewonnenen Impulse bevorzugt. Eine Berechnung der Ionisationszeiten erfordert eine sehr genaue Kenntnis der Spitzenintensität und der Pulslänge, sodass ein aussagekräftiger Vergleich erschwert wird. Der Vergleich der Mess- und Simulationsergebnisse in Abb.6.11 zeigt, dass die quasistatische Rate zu geringe Impulse liefert. Dass heißt diese Rate überschätzt die Ionisationswahrscheinlichkeit bei hohen Intensitäten, sodass der erste Ladungszustand bei zu geringen Feldstärken

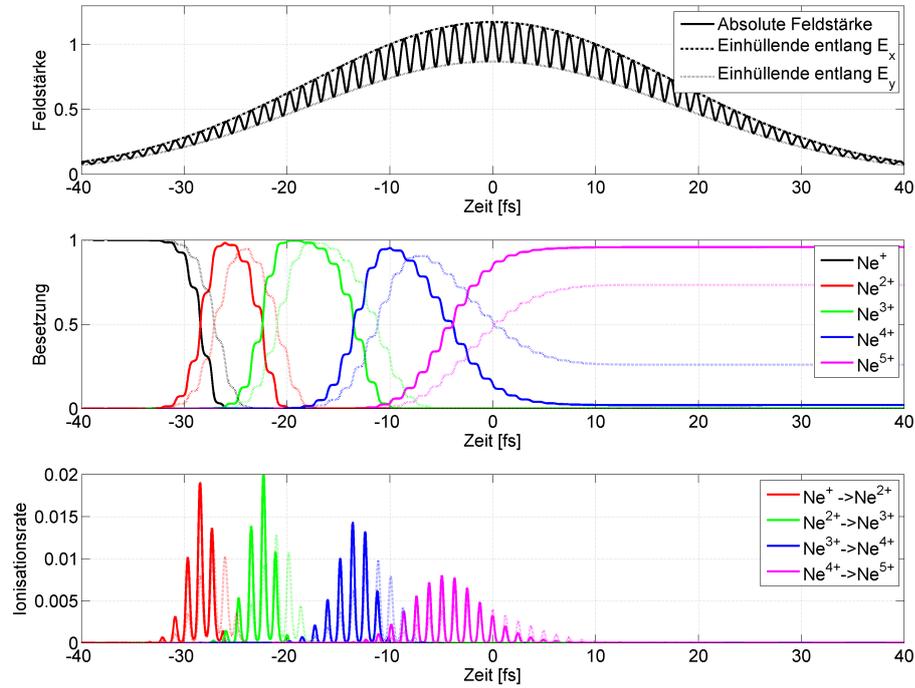


Abbildung 6.10: Lösung der Ratengleichung auf Grundlage der quasistatischen Rate (Durchgezogene Linie) für Ionisation von  $\text{Ne}^+$  nach  $\text{Ne}^{5+}$  eines 36 fs-Laserpulses mit einer Spitzenintensität von  $I=7,5 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  und einer Elliptizität  $\epsilon = 0.74$ . Die gepunktete Linie zeigt zum Vergleich die Lösung mit der durch die Faktoren von Tong und Lin korrigierten Rate: a) Verlauf des Betrages des elektrischen Feldes sowie der Einhüllenden entlang beider Polarisationsrichtungen, b) Besetzung der Ladungszustände und c) Änderung der Besetzung der Ladungszustände.

entleert wird. Dies ist besonders gut zu erkennen, für den Schritt 123 aus der Doppelionisation.

Es ist bekannt, dass die verwendete quasistatische Tunnelrate für hohe Feldstärken die Ionisationswahrscheinlichkeit überschätzt. Tong und Lin haben daher durch Vergleich mit numerischer Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung (TDSE) Faktoren entwickelt, die diesen Effekt korrigieren [9].

Tong und Lin präsentierten folgende Modifikation der quasistatischen Rate  $\Gamma_{\text{qs}}$  aus Gl. 2.4 basierend auf einen Fit ihrer Ergebnisse aus den TDSE-Rechnungen:

$$\Gamma_{\text{TL}}(E) = \Gamma_{\text{qs}}(E) e^{-\alpha \frac{Z^2}{I_{\text{P}}} \frac{E}{(2I_{\text{P}})^{3/2}}}. \quad (6.10)$$

Tabelle 6.1: Parameter  $\alpha$  für einige Atome und Ionen [9].

Z	$\alpha$
Ne	9,0
$\text{Ne}^+$	8,0
Ar	9
$\text{Ar}^+$	8,0
He	7,0
H	6,0

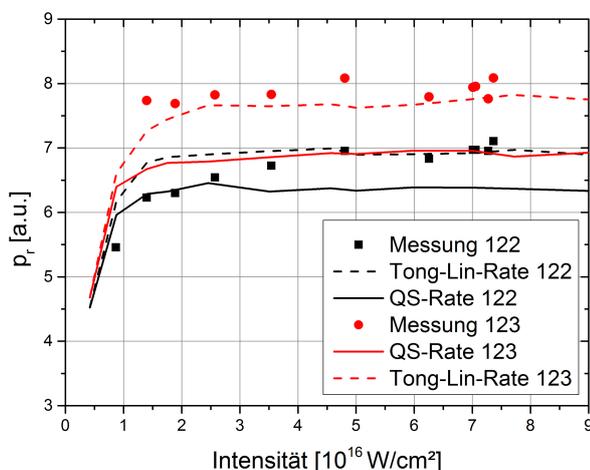


Abbildung 6.11: Vergleich der Messdaten mit dem Ergebnis von Monte-Carlo-Simulationen für verschiedene Ionisationsraten für die Ionisationsschritte 122 und 123. Es ist sehr gut erkennbar, dass die Simulation unter Verwendung der nicht korrigierten quasistatische Rate im Vergleich mit den Messdaten deutliche zu kleine mittlere Impulse liefert.

Die Faktoren  $\alpha$  sind in Tabelle 6.1 angegeben.

In Abb.6.11 sind zusätzlich die Resultate der Simulation unter Verwendung der korrigierten Rate dargestellt. Die Übereinstimmung mit dem Experiment für hohe Feldstärken ist deutlich besser. Eine mögliche Ursache für die größeren Abweichungen bei niedrigen Intensitäten kann die Veränderung des Fokusvolumens bei dem Intensitätsveränderung sein. Die Intensität wurde variiert, indem die Position des Laserfokus relativ zum Ionenstrahl verschoben wurde. Dies ist in der Simulation nicht berücksichtigt.

Für die höheren Ladungszustände von Neon ab  $\text{Ne}^{2+}$  geben Tong und Lin keine Werte für  $\alpha$  an. Um die mögliche Wirkung der korrigierten Ionisationsrate auf die höheren Ladungszustände zu verdeutlichen, wurden die Ratengleichung mit Korrekturfaktoren gelöst (siehe Abb.6.10). Für die Ladungszustände ab  $\text{Ne}^{2+}$  wurde dabei in Approximation jeweils der Korrekturfaktor von  $\text{Ne}^+$  eingesetzt.

Die quasistatische Rate sagt schon den ersten und einfachsten Ionisationsschritt nicht richtig voraus. Simulationen, die auch die höheren Ladungsschritte behandeln, sind daher schwer.

Desweiteren hängt die quasistatische Ionisationsrate (siehe Gl. 2.4) von der Projektion  $m$  des Drehimpulses des Elektrons auf die Laserpolarisationsachse ab. Für den ersten Ionisationsschritt aus dem  $\text{Ne}^+$  ist die Annahme, dass das erste Elektron aus einem Orbital mit  $m = 0$  entfernt wird. Für die weiteren Schritte ist es nicht klar, welche Elektronenkonfiguration zur

Ionisation angenommen werden soll. Die beiden Grenzfälle,  $m = 0$  und  $m = 1$  für alle Schritte auf Grundlage der quasistatischen Rate ist in Tabelle 6.2 gezeigt.

Tabelle 6.2: Ergebnisse der Vierfachionisation für  $p_{r0}$  aus Experiment und Monte-Carlo-Simulation bei der Intensität von  $7 \cdot 10^{16} \text{W/cm}^2$ . Dabei wurden die Quantenzahlen einmal alle  $m = 0$  bzw.  $m = 1$  gesetzt.

Schritt	125	235	345	455
$p_{r0}$ [a.u.] (Messung)	7,99	14,8	18,44	25,4
$p_{r0}$ [a.u.] (Quasis. R. $m = 0$ )	6,7	11,1	18,8	25,6
$p_{r0}$ [a.u.] (Quasis. R. $m = 1$ )	9,5	14,1	20	24,8

Zur Berechnung der Raten ist daher die Kenntnis der Elektronenkonfiguration nach der Ionisation notwendig. Am stärksten zur Ionisationsrate tragen die p-Orbitale bei, die entlang der Laserpolarisationsachse ausgerichtet sind. Daher erzeugt die Ionisation durch ein starkes Feld eine Elektronenlücke, die entlang des Laserfeldes ausgerichtet ist.

Rohringer *et al.* zeigten durch ab-initio-Berechnungen der zeitabhängigen Schrödingergleichung, dass sich das Ion nach der Starkfeldionisation in einem teilweise kohärenten nichtstationären Zustand befindet [51]. Dies wurde durch Messung der transienten Absorption des  $\text{Kr}^+$ -Ions nach der Ionisation experimentell bestätigt [52]. Mit der Ionisation startet in der Elektronenhülle eine kohärente und periodische Bewegung der Elektronenlücke im zurückbleibenden Ion. Der korrespondierende Zustand ist eine Superposition mehrerer Energieeigenzustände. Die Besetzung der verschiedenen Zustände oszilliert mit der Periodendauer  $T = h/\Delta E$ , die durch die Energieaufspaltung der Zustände gegeben ist [51]. Damit verändert sich auch die Population der Orbitale, die entlang der Laserpolarisation ausgerichtet sind, da die Elektronenlücke zwischen Orbitalen mit  $m = 0$  und  $|m| = 1$  wechselt [53].

Diese Oszillation in der Elektronenhülle moduliert die Ionisationswahrscheinlichkeit des nächsten Ionisationsschrittes. Wörner *et al.* zeigen wie die Änderung in der Elektronenkonfiguration zur Berechnung der Ionisationsrate berücksichtigt werden kann [54]. Die Ionisationsrate wird abhängig von dem Ionisationspotential und den Drehimpulsquantenzahlen  $l$  und  $m$  angegeben. Für Multielektronensysteme kann jedoch keine Basis gefunden werden, in der sich sowohl die Energielevel der Zustände als auch die Zustände der Drehimpulse der einzelnen Elektronen diagonalisieren lassen. Daher müsste für solche Berechnungen eine Transformation zwischen der Basis der Energie und der Drehimpulse jedes Zustandes (Quantenzahlen  $L, S, J, M_J$ ) und den Eigenzuständen der Elektronen ( $l, s, m_j$ ) durchgeführt werden. Dies ist aufgrund der Anzahl der beteiligten Zustände in der bis zu vierfachen Ionisation sehr aufwendig.

Die Energiezustände der Ladungszustände von  $\text{Ne}^+$  bis  $\text{Ne}^{5+}$  sind in Abb. 6.12 mit der An-

regungsenergie abgebildet. Für jeden Ladungszustand ergibt sich aus den Energiedifferenzen der Zustände die möglichen Rückkehrzeiten der periodischen Besetzungsveränderung. Dabei entspricht eine Energiedifferenz von 1 eV der Zeitdauer von 4.1 fs. Somit ergeben sich für alle Ladungszustände Zeiten von weniger als einer fs bis zu mehreren 10 fs, so z.B. für  $\text{Ne}^{2+}$  1,1 fs, 1,3 fs, 36 fs und 52 fs. Diese Zeitdauern sind in dem selben Bereich, in dem die Zeitabstände der Ionisationsschritte liegen (siehe Kap. 6.6).

In den Atomen der Edelgase sind die angeregten Zustände selber Quantenzahl energetisch weit vom Grundzustand entfernt und können vernachlässigt werden. Für die höheren Ladungszustände können zusätzlich die angeregten Zustände höherer Hauptquantenzahl relevant werden.

Im Gegensatz zu den meisten bisherigen Experimenten zur Ionisation von Atomen beginnt in dieser Arbeit schon der erste Ionisationsschritt von  $\text{Ne}^+$  zu  $\text{Ne}^{2+}$  mit der Ionisation eines Elektrons aus einer nicht abgeschlossenen Elektronenhülle. Dies ist ein Unterschied zu den herkömmlichen Experimenten, die die Doppelionisation ausgehend von Edelgasatomen mit abgeschlossenen Schalen der Valenzelektronen untersuchen.

Zudem ist für die Ionisation mit elliptischer Polarisierung die Beschreibung schwieriger. Der Feldvektor und damit die Polarisationsachse rotiert, sodass effektiv eine Überlagerung verschiedener Zustände entlang der Polarisationsachse ausgerichtet ist. Für mittlere Elliptizitäten muss auch die Ionisation entlang der kleinen Achse der Polarisationsellipse betrachtet werden.

Die Besetzungsdynamik im Ion wird umso komplexer, je mehr Ionisationsschritte beteiligt sind. Eine Implementierung dieser Dynamik in der Simulation ist sehr schwierig. Es ist daher nicht möglich, Aussagen darüber zu treffen, ob die Ionisationszeiten mit den theoretischen Vorhersagen übereinstimmen. Es sind weitere intensivere Untersuchungen nötig, um zu überprüfen, ob und wie die Ionisation des ersten Elektrons die Ionisationswahrscheinlichkeit der nachfolgenden Elektronen beeinflusst.

Tabelle 6.3: Spin-Orbit-Aufspaltung und korrespondierende Oszillationsdauer für die Ladungszustände von Neon.

Z	$\Delta E_{\text{SO}}$ [eV]	Dauer [fs]
$\text{Ne}^{1+}$	0,096	42,7
$\text{Ne}^{2+}$	0,114	35,9
	0,079	51,5
$\text{Ne}^{3+}$	-	-
$\text{Ne}^{4+}$	0,0598	80,5
	0,138	29,8

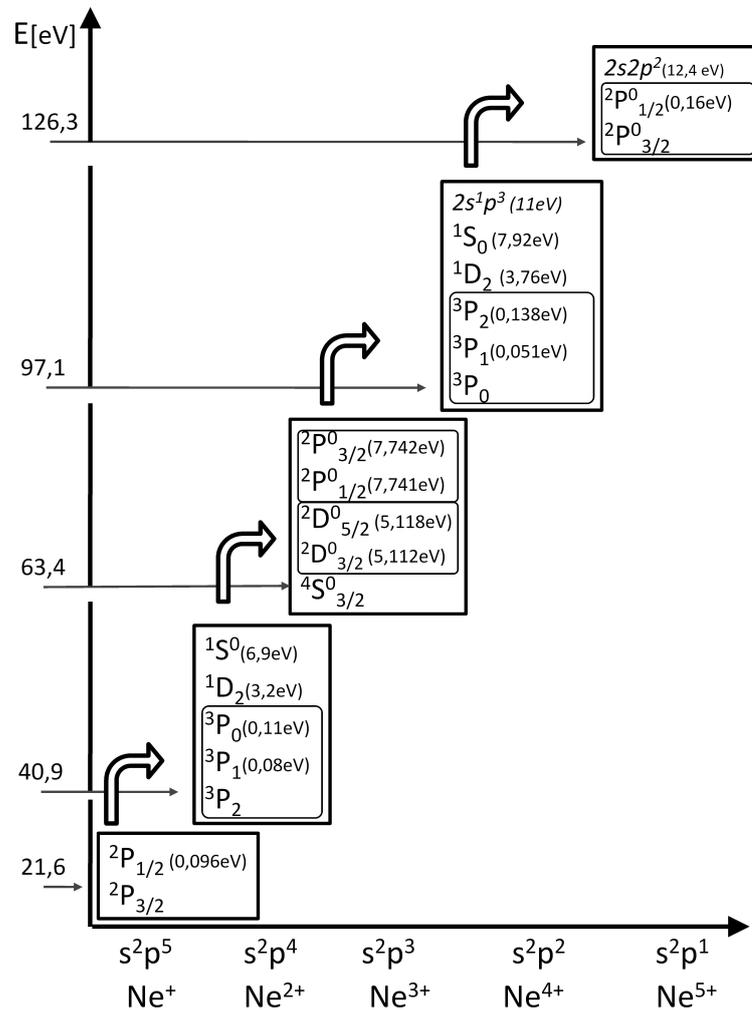


Abbildung 6.12: Schema aller Zustände der Ladungszustände von Neon [55]. Die Energieskala auf der linken Seite zeigt die jeweiligen Ionisationsenergien. In den Rechtecken sind die Zustände eines Ladungszustandes eingetragen. In den Klammern sind die Anregungsenergien der Zustände markiert. Die infolge der Spin-Bahn-Aufspaltung eines Zustandes ist durch einen Rahmen markiert. Ihre Energieaufspaltungen sind klein im Vergleich zu den anderen Zuständen eines Ladungszustandes. Für die hohen Ladungszustände sind die Zustände höherer Hauptquantenzahl eingetragen und kursiv markiert. Ihre Anregungsenergie zeigt, dass die Anregung dieser Zustände ebenfalls eine Rolle spielen kann.

# Kapitel 7

## Einfluss des Coulombfeldes und Korrelationen

### 7.1 Keldyshparameter

In der Theorie wird der Keldyshparameter  $\gamma$  (siehe Kap. 2.2) genutzt, um die Ionisation in die beiden Grenzfälle der Ionisation, die Multiphotonen- ( $\gamma \gg 1$ ) oder Tunnelionisation ( $\gamma \ll 1$ ), zu unterscheiden [19]. Typischerweise wird die Ionisationsdynamik in der Starkfeldphysik mit Experimenten mit einem Keldysh-Parameter von  $\gamma \approx 1$ , bei einigen  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> und 800 nm durchgeführt (z.B. [35]). Damit liegt ein Bereich vor, bei dem nicht eindeutig zwischen Multiphoton- oder Tunnelionisation unterschieden werden kann. Für sehr hohe Intensitäten wird das atomare Potential durch das Laserfeld so weit nach unten gedrückt, dass die Ionisation ohne Tunneln möglich ist (siehe Kap. 2.4). Dieser als “Over Barrier Ionisation“ bezeichnete Mechanismus limitiert bei fester Laserwellenlänge und konstantem Ionisationspotential den minimal erreichbaren  $\gamma$ -Parameter. Wie eine einfache Betrachtung zeigt, skaliert  $\gamma_{min}$  mit der Ladungszahl  $Z$  des zu ionisierenden Atoms oder Ions mit  $\gamma_{min} \approx Z^{-2}$ . Wird für maximale Intensität die “Over Barrier Ionisation“-Intensität  $I_{BSI} = Z^{-2}(I_p/2)^4$  eingesetzt und angenommen, dass die Bindungsenergie  $I_p$  wie im Wasserstoffatom mit  $I_p = \frac{1}{2}Z^2$  skaliert, erhält man

$$\gamma_{min} = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} = \sqrt{\frac{I_p}{2\frac{I_{BSI}}{4\omega^2}}} = \sqrt{\frac{2\omega^2 I_p}{\frac{1}{Z^2}(\frac{I_p}{2})^4}} \propto \sqrt{\frac{Z^2\omega^2}{Z^6}} \propto \frac{\omega}{Z^2}, \quad (7.1)$$

dabei ist  $U_p$  das ponderomotive Potential,  $I$  die Laserintensität und  $\omega$  die Laserfeldfrequenz. Im Vergleich zur Ionisation von Atomen erlauben Ionen mit höherem  $Z$  die Untersuchung von Ionisation in einem Bereich mit niedrigeren Keldysh-Parameter und damit näher am

Tunnelregime.

Die aus den Fitergebnissen ermittelten  $\gamma$ -Werte und ponderomotiven Energien sind in Abb. 7.1 dargestellt und folgen der Abhängigkeit aus Gl. 7.1.

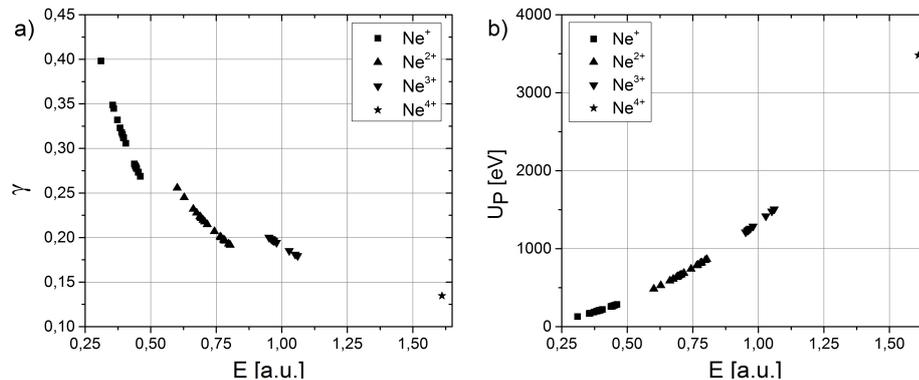


Abbildung 7.1: Berechnung der Kelydshparameter (a) und der ponderomotiven Energien (b) für die beobachteten Ionisationsvorgänge.

## 7.2 Coulomb - Verdrehung in Einfachionisation

Die Verdrehung  $\Theta$  zwischen den Maxima der Zählrate und der kleinen Halbachse der Polarisationsellipse in den Impulsverteilungen nach Einfachionisation steht im Fokus aktueller experimenteller und theoretischer Untersuchungen (siehe Kap. 3.3). Pfeiffer *et al.* berichten, dass die Verdrehung für die Ionisation von Argonatomen mit fast zirkularer Polarisation monoton mit steigender Intensität abfällt und in Helium über den untersuchten Intensitätsbereich nahezu konstant bleibt. Weiterhin wurde gezeigt, dass die Richtung der Verdrehung von der Rotationsrichtung der elliptischen Polarisation abhängt.

Der Winkel  $\Theta$  ist das Resultat mehrerer Effekte, deren einzelne Beiträge gegenwärtig nicht komplett verstanden sind [10, 25].

Erstens ändert sich der Winkel, unter dem das Elektron im Laserfeld abgelenkt wird, wenn die Ionisation vor dem Maximum des Laserpulses auftritt, da dort aufgrund der Form der Einhüllenden des Laserpulses das elektrische Feld und das korrespondierende Vektorpotential nicht mehr exakt senkrecht zueinander stehen (siehe Abb. 7.4).

Weiterhin kann für sehr hohe Intensitäten und sehr kurze Pulsdauern die Population des Ladungszustandes durch Ionisation innerhalb eines Zyklus so stark verringert werden, dass die Ionisationszeit im Laserzyklus nach vorne verschoben wird. Weiterhin beeinflusst das Potential des zurückbleibenden Ions und der anderen Elektronen die Trajektorie des ionisierten

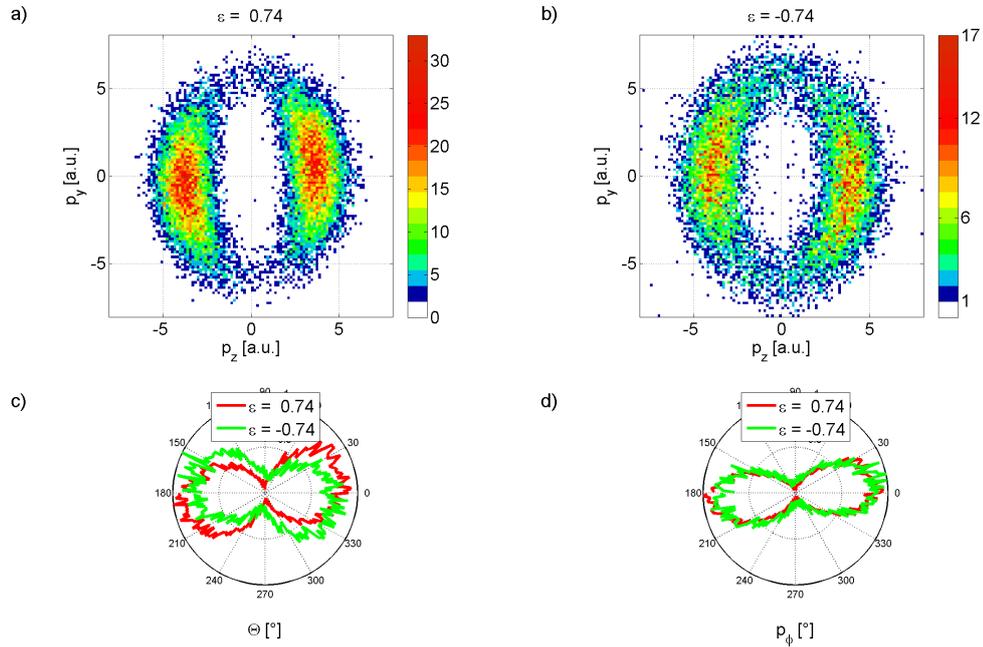


Abbildung 7.2: Abhängigkeit der Verdrehung in den Impulsverteilungen von der Rotationsrichtung der fast zirkularen Polarisation, für rechtselliptische (a) und linkselliptische (b) Polarisation. Das Histogramm (c) in Winkel  $\Theta$  zeigt entgegengesetzte Verdrehung. Die Abb. (d) zeigt die Wirkung der Transformation in elliptizitätskorrigierte Koordinaten. Der elliptizitätskorrigierte Winkel  $p_{\phi 0}$  zeigt für beide Verteilungen in die selbe Richtung, da die Transformation (siehe Gl. 6.2) durch Multiplikation mit der Elliptizität für  $< 0$  den Drehsinn der Verdrehung ändert.

Elektrons [8].

Diese Wechselwirkung verschiebt die Impulsverteilung der Ionen und der Elektronen in die Richtung der Laserpolarisation und hängt sehr stark von der exakten Tunnelgeometrie ab. Es wird angenommen, dass sich mit steigender Ionisationsfeldstärke der Tunnelausgang näher an das Potential des Ions verschiebt, was den Einfluss auf den Impuls des Elektrons verstärkt. Weiterhin ist nicht klar, ob die Ionisation des Elektrons instantan mit dem Maximum des Laserfeldes oder doch mit einem geringen Zeitversatz, einem sogenannten Tunneldelay, abläuft [56, 57]. So eine Tunnelzeit würde ebenfalls zur Verdrehung in Polarisationsrichtung führen.

Auch in der vorliegenden Arbeit wurde eine Verdrehung in den Impulsverteilungen der Ionen nach der Ionisation der  $\text{Ne}^+$ -Ionen beobachtet. Die Abhängigkeit der Verdrehung vom Vorzeichen der Elliptizität ist in Abb. 7.2 dargestellt. Das Maximum der Zählrate ist in Bezug auf die Laserpolarisation in die Richtung verdreht, in die der elektrische Feldvektor für einen festen Ort in der Zeit rotiert. Das Elektron wird scheinbar zu einem späteren Zeitpunkt

aus dem Atom befreit. Dies konnte für Messungen mit linkselliptischer und rechtselliptischer Polarisation überprüft werden.

Zur korrekten Bestimmung der Verdrehung, die meist nur wenige Grad beträgt, wurde die Fitfunktion aus Gl. 6.3 genutzt. Da die Carrier-Envelope-Phase der Laserpulse im Experiment nicht stabilisiert war, sind die beiden Maxima in der Impulsverteilung im  $p_\phi$ -Histogramm um den selben Winkel relativ zur Polarisationsellipse und zueinander um  $180^\circ$  verschoben. Um die Periodizität bei Verschiebung der Maxima zu berücksichtigen, muss folgende spezielle Gaußfunktion als Fitfunktion gewählt werden:

$$F_{\text{Fit}}(p_\phi) = A_0 \sum_{m=-1}^2 e^{\left(\frac{p_\phi - p_{\phi 0} + m \cdot 180}{\Delta p_\phi}\right)^2} \quad (7.2)$$

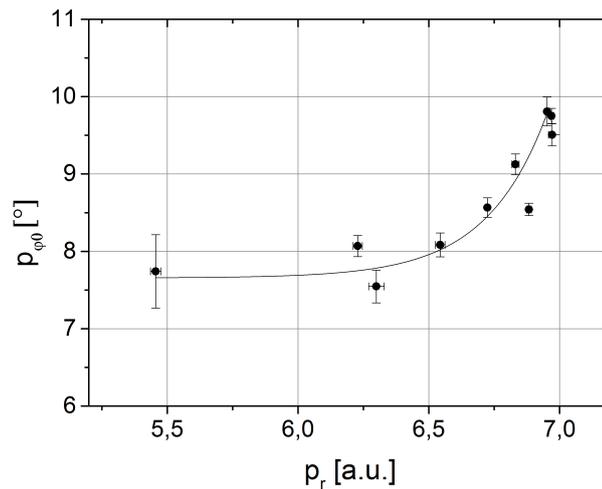


Abbildung 7.3: Verdrehung in der elliptizitätskorrigierten Winkelkoordinate  $p_{\phi 0}$  in Abhängigkeit von  $p_r$  für die Einfachionisation 122 bei einer Elliptizität von 0.74

Die Ergebnisse für die Intensitätsabhängigkeit der Verdrehung der Maxima der Zählrate im Vergleich zur Polarisationsellipse für eine Elliptizität von  $\epsilon = 0,74$  ist in Abb. 7.3 dargestellt. Die Darstellung erfolgt in Abhängigkeit des übertragenen Impulses, da dieser proportional zur Ionisationsfeldstärke ist (siehe Kap. 3.3). Diese Angabe bietet damit eine deutlich bessere Information als die im Experiment eingestellte maximale Intensität im Laserfokus.

In elliptizitätskorrigierten Koordinaten beträgt die Verdrehung  $p_{\phi 0}$  zwischen  $7^\circ$  und  $10^\circ$ . Dabei wird für steigende Impulse  $p_{r0}$  bzw. Ionisationsfeldstärken ein Anstieg des Winkels festgestellt. Für diesen Anstieg gibt es zwei mögliche Ursachen.

Für steigende Feldstärken wird der Tunnelausgang näher an das Atom verschoben und der Einfluss des Coulombpotentials auf die Trajektorie des Elektrons wächst. Der andere Effekt ist, dass für Zeiten vor dem Maximum des Laserpulses das elektrische Feld und das korrespondierende Vektorpotential aufgrund der Form der Pulseinhüllenden nicht mehr senkrecht aufeinander stehen (siehe Abb. 7.4). Dieser Effekt ist um so größer, je weiter der Zeitpunkt vor dem Maximum des Pulses liegt.

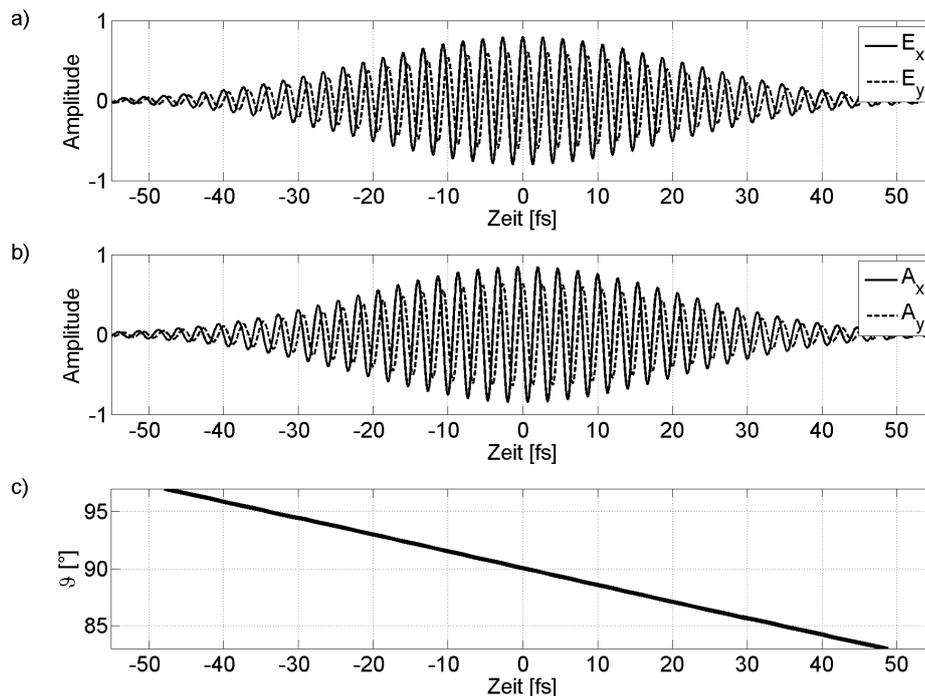


Abbildung 7.4: Feldkomponenten des a) elektrischen Feldes und b) Vektorpotentials eines gaußförmigen 35fs-Laserpulses mit einer Elliptizität von  $\epsilon=0,75$ . In c) ist der Verlauf des Winkels  $\vartheta$  zwischen dem elektrischen Feldvektor und Vektorpotential an den Maxima der Feldoszillation, der nur am Maximum der Pulseinhüllenden exakt den Wert  $90^\circ$  annimmt.

Diese beiden Effekte bewirken eine Rotation der Impulsverteilungen in dieselbe Richtung. Es ist daher nicht möglich, zwischen den beiden Effekten zu unterscheiden. Es ist jedoch möglich, dass der steile Anstieg der Verdrehung für steigende Feldstärken vor allem auf den Effekt des Vektorpotentials zurückzuführen ist. In Abb. 7.4 ist zu erkennen, dass für die relevanten Ionisationszeiten, die sich weiter vorne in der ansteigenden Flanke der Laserpulseinhüllenden befinden, der Winkelbeitrag des Vektorpotentials bis zu  $3^\circ$  betragen kann.

Der beobachtete Anstieg der Verdrehung mit der Feldstärke unterscheidet sich von den Ergebnissen von Pfeiffer *et al.*, die für die Ionisation von Argonatomen ein Absinken des Winkels

für höhere Intensitäten festgestellt hatten.

### 7.3 Coulomb - Verdrehung in Mehrfachionisation

Wie in Abb. 5.2 zu erkennen, wird auch eine Verdrehung der Impulsspektren der Ionen nach Doppelionisation beobachtet. Dabei ist zu erkennen, dass die äußeren Maxima der Vierpeakstruktur stärker verdreht sind als die Maxima in der Einfachionisation, während die beiden inneren Maxima weniger verdreht sind als die der Einfachionisation.

Es ist jedoch nicht klar, ob die Verdrehung in mehrfacher Ionisation ähnlich behandelt werden kann wie die Impulse senkrecht zur Polarisationsachse, die sich durch sequentielle Addition ergeben. Lässt sich die Verdrehung der Ionenspektren ebenfalls mit Faltung der Elektronenimpulsverteilungen aus zwei sequentiellen Ionisationsschritten erklären? Inwieweit beeinflusst die Verdrehung des ersten Schrittes in der Doppelionisation, der analog zur Einfachionisation sein sollte, die Verdrehung im zweiten Schritt? Ist die Verdrehung des Schrittes 233 die gleiche wie die Verdrehung, die man nach Einfachionisation eines zweifach geladenen Ions erhalten würde? Lassen sich in den Winkelverteilungen der Impulsspektren Anzeichen für Korrelationen in mehrfacher Ionisation finden?

Die Aufstellung der zweidimensionalen Fitfunktion aus Kap. 6.4 erlaubt zum erstem mal auch Aussagen zur Verdrehung in den Impulsverteilungen nach Doppelionisation. Bisher wurde in der Literatur nur die Verdrehung in der Einfachionisation diskutiert. Grund dafür ist, dass die Verdrehung nur bei Messung der Elektronen direkt zugänglich ist. Bei der Messung von Doppelionisation mit COLTRIMS sind nicht alle Elektronen detektierbar. Aus den Ionenspektren die Verdrehung zu gewinnen, erfordert eine sehr hohe Auflösung und eine geeignete Analyse, die in der Lage ist die Verdrehung in den verschiedenen Ionisationsschritten zu rekonstruieren.

Das Ergebnis dieser Fitmethode ist für die beiden Ionisationsschritte der Doppelionisation im Vergleich mit dem Einfachionisationsschritt, der im letzten Kapitel untersucht wurde, in Abb. 7.5 dargestellt. Aufgrund der Rekonstruktion weisen die Ergebnisse für Doppelionisation eine deutliche höhere Unsicherheit auf.

Die Verdrehung des ersten Ionisationsschrittes der Doppelionisation (123) beträgt zwischen  $9^\circ$  und  $11^\circ$  und setzt den ansteigenden Trend bei steigender Ionisationsfeldstärke fort, der für die Einfachionisation beobachtet wurde.

In Abb. 7.5 ist ein kleiner Sprung zwischen der Verdrehung der Ionisationsschritte 122 und 123 zur erkennen. Dies könnte ein Einfluss des zweiten Ionisationsschrittes in der Doppelionisation auf die Verdrehung der Impulsverteilung sein. Da die Analyse der Doppelionisati-

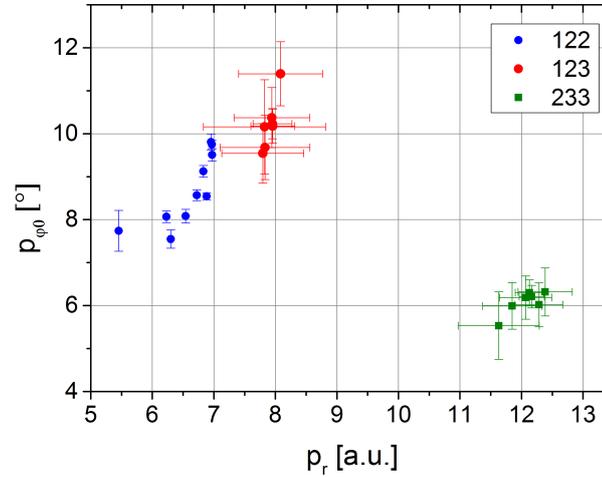


Abbildung 7.5: Verdrehung  $p_{\phi_0}$  in Abhängigkeit von  $p_{r0}$  für die Einfachionisation 122 und die beiden Schritte der Doppelionisation bei einer Elliptizität von 0.74

onsverteilungen jedoch eine deutlich größere Unsicherheit aufweist, kann dies auch ein Effekt der Fitmethode darstellen.

Für den zweiten Ionisationsschritt 123 der Doppelionisation werden Verdrehungen  $p_{\phi_0}$  von  $5^\circ$  bis  $7^\circ$  beobachtet. Auch bei diesem Ionisationsschritt steigt die Verdrehung mit der Feldstärke. Im Vergleich zum ersten Ionisationsschritt kann beobachtet werden, dass der Winkel für die Ionisation des höheren Ladungszustandes kleiner ist.

Die Beobachtung, dass die Verdrehung mit der Ladungszahl  $Z$  sinkt, widerspricht der Erwartung, dass höhere Ladungszustände aufgrund der höheren Ladungszahl eine stärkere Coulombkorrektur bewirken.

In der einfachsten Betrachtung skaliert die Position des Tunnelausgangs  $x_e = \frac{I_p}{E} \propto \frac{1}{Z}$  und man würde eine Erhöhung der Coulombkorrektur erwarten. Dies ist jedoch nicht der Fall, da das Ionisationspotential ebenfalls größer wird.

Obwohl sich für höhere Ladungszustände der Tunnelausgang näher an das Ion verschiebt und das Coulombpotential stärker wird, sorgt der Anstieg des Ionisationspotentials dafür, dass der Tunnelausgang im Vergleich nicht so viel näher an das Coulombpotential des Ions heranrückt, als dass im Vergleich zur Feldstärke das Coulombfeld einen größeren Einfluss auf die Elektronenbahn nehmen könnte. Im Gegenteil, da durch das höhere Ionisationspotential auch die elektrische Feldstärke größer ist, wird der Effekt des stärkeren Potentials ausgeglichen und der Ablenkwinkel  $\Theta$  reduziert .

Entgegen der Erwartung, dass höhere Ladungszustände aufgrund der höheren Ladungszahl

eine stärkere Coulombwechselwirkung besitzen, nimmt die Coulombkorrektur mit höherem Ladungszustand ab.

## 7.4 Vergleich mit Simulationen

Um die Verdrehung der Impulsspektren mit Simulationen zu vergleichen, ist das einfachste Modell der Starkfeldionisation (siehe Kap. 2.3.1) nicht geeignet. Dieses Modell sagt voraus, dass die Maxima exakt senkrecht zur Polarisationshauptachse ausgerichtet sind. Um die Richtung und die Stärke der Verdrehung durch klassische Simulationen zu reproduzieren, wurde das TIPIS-Modell entwickelt (siehe Kap. 2.3.4) [8]. Die üblichen semiklassischen Modelle waren nicht in der Lage, die experimentellen Ergebnisse von Pfeiffer *et al.* zu reproduzieren. Die Nutzung der parabolischen Koordinaten verbesserte die Übereinstimmung. Die experimentell beobachtete Intensitätsabhängigkeit wurde erst durch Berücksichtigung der Starkverschiebung und eines effektiven Potentials der Valenzelektronen erreicht. Damit wird ein Anstieg der Ionisationsenergie und damit eine Erhöhung der Barriere bewirkt. Dies verschiebt den Tunnelausgang nach außen und der Einfluss der Coulombkorrektur sinkt.

Für Berechnungen im Rahmen des TIPIS-Modells ist die Kenntnis der Polarisierbarkeiten  $\alpha_1$  des zu ionisierenden Atoms (oder Ions) als auch  $\alpha_2$  des ionisierten Ions nötig. Für neutrale Atome sind die Polarisierbarkeiten oft experimentell bestimmt und tabelliert. Eine umfangreiche Aufstellung findet sich in [58], jedoch gibt es nur wenige Angaben für die höheren Ladungszustände. Für die Neon-Ionen existieren nur theoretische Berechnungen für  $\text{Ne}^{6+}$  und  $\text{Ne}^{8+}$ . In Abb. 7.6 sind alle bekannten Werte der Edelgasatome und -ionen dargestellt. Die benötigten Polarisierbarkeiten für  $\text{Ne}^{1+}$  bis  $\text{Ne}^{5+}$  wurden mit Hilfe einer geeigneten Fitfunktion ermittelt. Es ist daher bei der Interpretation der Ergebnisse zu beachten, dass diese Werte nur eine Abschätzung darstellen. Die Angabe der statischen Polarisierbarkeiten ist jedoch nur für den Grundzustand gerechtfertigt. Werden Übergänge zu höheren Zuständen angeregt, wie es für die höheren Ladungszustände der Fall sein kann (siehe Kap. 6.7), ist dies nicht mehr gewährleistet.

Die aus Quelle [58] entnommenen bzw. interpolierten Werte für die Polarisierbarkeiten  $\alpha$  sind in der Tabelle 7.1 zusammengefasst.

In Neon ist die Polarisierbarkeit kleiner als z.B. bei Argon. Somit ist der Einfluss der Starkverschiebung und des induzierten Multielektronenpotentials nicht so groß wie in den Untersuchungen von Pfeiffer *et al.* für Argon [8].

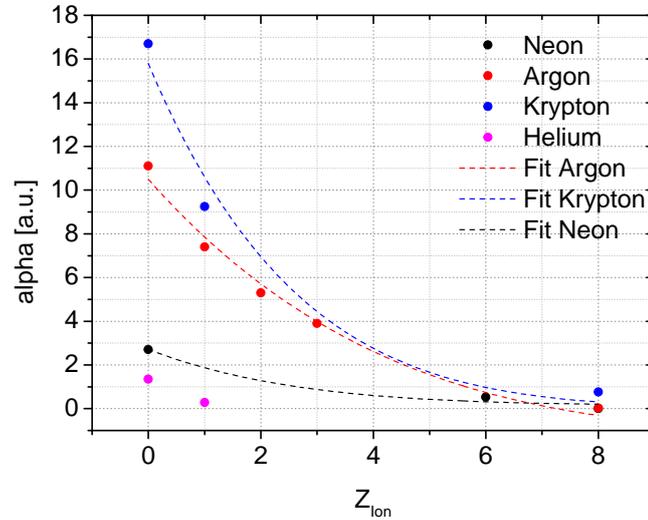


Abbildung 7.6: Fit zur Bestimmung der Polarisierbarkeiten von Edelgasatomen und ihren Ionen, soweit experimentelle oder theoretische Werte vorhanden [58]. Der verwendete Fit hat die Form  $f(Z) = a_1(18 - Z)^7 - a_2$ . Die Fitfunktion mit der Abhängigkeit  $f \propto (N - Z)^{4,5}$ , wie sie in der Quelle angegeben wird, gilt nur für hohe Ladungszustände.

Eine einfache Simulation für die Ionisation von  $\text{Ne}^{n+}$  auf Basis der Berechnung einer einzelnen Trajektorie im Tipis-Modell für verschiedene Intensitäten der Laserpulse ist in Abb. 7.7 dargestellt. Dort sind zum Vergleich auch die experimentellen Ergebnisse für die Dreifachionisation gezeigt. Aufgrund der geringen Statistik und der Anzahl der Fitparameter ist die Unsicherheit der Angabe der Winkel jedoch vergleichsweise groß. Es ist zu erkennen, dass die Verdrehung für die höheren Ladungszustände sowohl in der Simulation als auch in den experimentellen Ergebnissen absinkt. Allerdings ist die Größe der Verdrehung aus den Fitergebnissen für alle Ionisationsschritte zu groß. Hier ist festzustellen, dass der Winkel

$\theta$  bzw.  $p_{\phi 0}$  nur eine kleine Verdrehung darstellt, die nur schwer mit großer Genauigkeit zu bestimmen ist. Auch die Bestimmung des Winkels  $\beta$ , der Orientierung der Polarisation des Laserfeldes, hat für diese Angabe eine große Bedeutung. Die Unsicherheit der Ellipsometrie-

Tabelle 7.1: Verwendete Polarisierbarkeiten von Helium und Neon sowie ihren höheren Ladungszuständen

Z	$I_p$ [eV]	$I_p$ [a.u.]	$\alpha$
$\text{He}^+$	24,59	0,904	1,38
$\text{He}^+$	54,42	2	9/32
Ne	21,56	0,79	2,67
$\text{Ne}^+$	40,96	1,51	1,87
$\text{Ne}^{2+}$	64,42	2,33	1,28
$\text{Ne}^{3+}$	97,19	3,57	0,89
$\text{Ne}^{4+}$	126,25	4,64	0,59
$\text{Ne}^{5+}$	157,93	5,81	0,43
$\text{Ne}^{6+}$	207,27	7,62	0,31
$\text{Ne}^{7+}$	239,10	8,79	0,25

messung beträgt ungefähr  $1,6^\circ$ .

Es ist jedoch nicht klar, ob das klassische Modell, das aus dem Wasserstoffatom abgeleitet wurde, in der Simulation tatsächlich eine korrekte Beschreibung der deutlich komplexeren Atome bzw. Ionen darstellt. Ein klassisches Ensemble kann die quantenmechanische Wellenfunktion immer nur teilweise reproduzieren. Zudem müssen etliche Parameter wie die statische Polarisierbarkeit in die TIPIS-Simulation eingehen. Außerdem ist nicht klar, ob gerade für die Ionisation von höher geladenen Ionen die Konzepte der statischen Polarisierbarkeit und eines induzierten Multielektronenpotentials in dieser Weise gerechtfertigt sind.

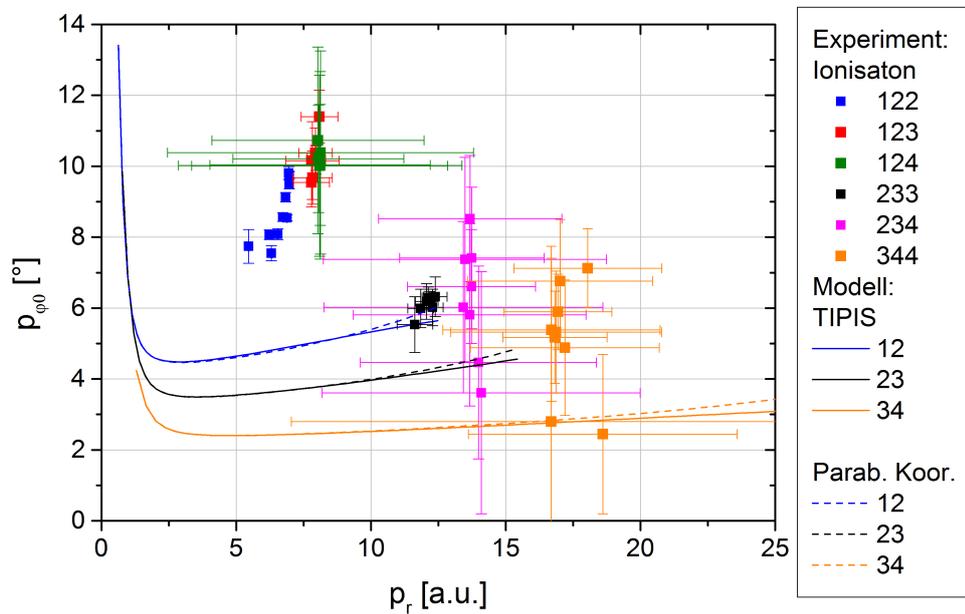


Abbildung 7.7: Der Winkel  $p_{\phi 0}$ : Vergleich zwischen Fitergebnissen und Berechnung des Winkels für Propagation eines Elektrons im TIPIS-Modell und in parabolischen Koordinaten für gegebene Feldstärke. Die Fehlerbalken beziehen sich auf die 95%-Konfidenzintervalle der Fitergebnisse. Für höhere Ladungszustände wird dieser Wert sehr groß. Die Unsicherheit der Ellipsometriemessung zur Bestimmung der Ausrichtung der Polarisationsellipse kommt zu diesen Fehler noch hinzu und beträgt ungefähr  $2^\circ$ . In den Simulationen wurde die Anfangsgeschwindigkeit des Elektrons vernachlässigt. Die Erklärung für den Unterschied zwischen parabolischen Koordinaten und dem TIPIS-Modell ist, dass die Starkverschiebung der Multielektronenterm im TIPIS-Modell den Tunnelausgang weiter vom Ion weg verschieben und die Coulomb-Verdrehung reduzieren.

## 7.5 Korrelation in Richtung der Doppelionisation

In der Literatur wird zwischen den Mechanismen der nichtsequentiellen und der sequentiellen Doppelionisation unterschieden. Für nichtsequentielle Doppelionisation (NSDI), bei der das zweite Elektron durch das zuerst ionisierte und im Feld zurückkehrende Elektron ionisiert wird, ist naturgemäß eine starke Korrelation in der Elektronenemission zu erwarten. Bei der sequentiellen Doppelionisation wird angenommen, dass die beiden Elektronen unabhängig voneinander und ohne Korrelation ionisiert werden. Die Ergebnisse von Pfeiffer *et al.* zeigen, dass es auch Anzeichen auf Korrelationen in der Doppelionisation mit elliptischer Laserpolarisation gibt, wo Rückstreuung keine Rolle spielt [11, 59].

Als Indikator für Korrelation in Doppelionisation eignet sich das Zählratenverhältnis  $R_{AP}$  zwischen Doppelionisationsereignissen, bei denen beide Elektronen in die gleiche Richtung emittiert wurden, und Doppelionisation, bei der die Elektronen in antiparalleler Richtung emittiert wurden. Für NSDI gibt es eine höhere Wahrscheinlichkeit, dass die Elektronen in dieselbe Richtung emittiert werden. Dies kann mit dem semiklassischen Modell erklärt werden. Für den Fall der sequentiellen Ionisation sagt das semiklassische Modell mit der „Single-Electron-Approximation“ voraus, dass das Verhältnis zwischen paralleler und antiparalleler Emission ausgeglichen sein sollte und damit keine Elektron-Elektron-Korrelation zu erwarten ist. Pfeiffer *et al.* [11] berichten jedoch über ein oszillierendes Verhalten bei geringen Intensitäten des Verhältnisses  $R_{AP}$ .

Für die vorliegende Arbeit wurden die Messungen der Doppelionisation von  $\text{Ne}^+$  unter diesem Aspekt ausgewertet. Für die in Kap. 6.4 beschriebene Fitmethode wurde eine Abweichung der Zählrate vom Wert  $R_{AP} = 1$  vernachlässigt, um die Anzahl der Fitparameter gering zu halten. Der Wert von  $R_{AP}$  kann über eine andere Methode bestimmt werden.

Wie in Kap. 5 erklärt, entspricht der Ionenimpuls nach Doppelionisation der Summe der beiden Elektronenimpulse. In der Projektion der Ionenimpulse entlang der kleinen Halbachse der Polarisation bildet sich daher eine charakteristische Vier-Peak-Struktur aus (siehe Abb. 5.2 und Abb. 5.4), in der die äußeren Maxima die Folge der parallelen und die inneren Maxima Konsequenz der antiparallelen Elektronenemission sind.

Da die verschiedenen Peaks in der Verteilung nicht durch einen eindeutigen Wert getrennt werden können, wird zur  $R_{AP}$  über das Integral von zwei angefitzten Gaußfunktionen der Form

$$F_{AP}(p) = A_P \left( e^{\left(\frac{p-PP}{\Delta p_P}\right)^2} + e^{\left(\frac{p+PP}{\Delta p_P}\right)^2} \right) + A_A \left( e^{\left(\frac{p-p_A}{\Delta p_A}\right)^2} + e^{\left(\frac{p+p_A}{\Delta p_A}\right)^2} \right) \quad (7.3)$$

bestimmt. Aus den Fitergebnissen kann das Verhältnis  $R_{AP}$  bestimmt werden. Die Ergebnisse sind in Abb. 7.8 als Funktion der Feldstärke zum Zeitpunkt des zweiten Ionisationsschrittes

dargestellt. Der Verlauf der Messpunkte lässt eine Abhängigkeit des Verhältnissen  $R_{AP}$  erken-

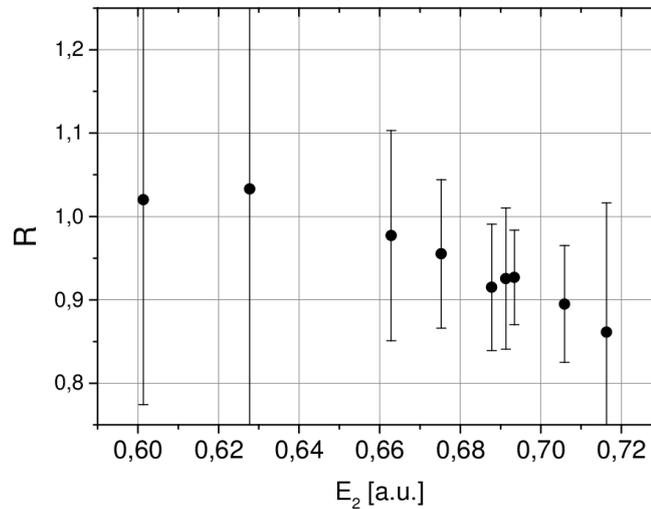


Abbildung 7.8: Verhältnis der Zählrate von Ionen nach Doppelionisation mit parallel oder antiparallel emittierten Elektronen in Doppelionisation in Abhängigkeit der Feldstärke bei der zweiten Ionisation.

nen. Für kleine Feldstärken wird die parallele Emission bevorzugt. Für steigende Feldstärken nimmt  $R_{AP}$  ab. Pfeffer *et al.* beobachteten ein oszillierendes Verhalten bei der Doppelionisation von Argonatomen bei kleinen Feldstärken. Dies ist bei diesen Messungen für die  $Ne^+$ -Ionen nicht zu erkennen. Die Anzahl verfügbarer Messpunkte ist aber zu klein, um eine abschließende Aussage treffen zu können. Für weitere Untersuchungen sollte zudem ein größerer Intensitätsbereich abgedeckt werden.

Eine Erklärung für die intensitätsabhängige Modulation des Zählratenverhältnisses  $R_{AP}$  könnte eine Verschiebung der Ionisationszeiten sein. Entscheidend für den Wert von  $R_{AP}$  ist, ob das Vektorpotential zum Zeitpunkt des zweiten Ionisationsschrittes in die selbe Richtung zeigt, wie zur Ionisation des ersten Ionisationszeitpunktes. Ist dies der Fall, findet eine parallele Elektronenemission statt. Findet die zweite Ionisation einen Halbzyklus versetzt statt, sodass das Vektorpotential zum Zeitpunkt der Emission des zweiten Elektrons in die entgegengesetzte Richtung zeigt, führt dies zur antiparallelen Elektronenemission. Für größere Feldstärken rücken die beiden Ionisationsschritte näher zusammen und die Richtung des Vektorpotentials an den beiden Ionisationszeiten verändert sich.

Die im Experiment verwendeten Laserpulse waren so lang, dass die Ionisation nicht auf einen Laserzyklus konzentriert war, sondern mehrere aufeinanderfolgende Halbzyklen des Laserfeldes zur Ionisation beitrugen. Dies ist aus der Lösung der Rategleichung in Abb. 6.10 zu erkennen. Daher ist der mittlere Zeitpunkt der Ionisation entscheidend und der Wert von  $R_{AP}$  weist nur eine geringe Modulation auf.

---

Die Entwicklung von  $R_{AP}$  kann zusätzlich von der in Kap. 6.7 erläuterten kohärenten Elektronenbewegung in der Elektronenhülle nach der Ionisation beeinflusst sein. Die Ionisationswahrscheinlichkeit des zweiten Ionisationsschrittes wird durch die Bewegung in der Elektronenhülle des Ions nach der ersten Ionisation moduliert. Auch dies kann das Verhalten des Zählratenverhältnisses von paralleler und antiparalleler Elektronenemission in Abhängigkeit der Laserintensität beeinflussen.

## Kapitel 8

# Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden dreidimensionale Impulsverteilungen von Ionen nach Photoionisation im Feld eines intensiven Laserpulses experimentell untersucht. Dazu wurden Laserpulse mit einer Pulsdauer von 36 fs bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm mit einer maximalen Intensität von  $7 \cdot 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> genutzt und Ne<sup>+</sup>-Ionen aus einem Ionenstrahl ionisiert. Die Experimente wurden für verschiedene Laserpolarisationen von linear bis zirkular durchgeführt. Die gemessenen Impulsverteilungen der Ionen für Einfach- bis Vierfachionisation wurden in Abhängigkeit der Elliptizität der Polarisation und der Laserintensität diskutiert. Aus den Impulsverteilungen nach Ionisation mit einer Elliptizität von ungefähr 0,75 lassen sich besonders viele Informationen über die Ionisationsdynamik gewinnen.

Die Untersuchung der Impulsverteilung der Einfachionisation hat gezeigt, dass der Übergang vom Tunnelprozess zu einem sich klassisch bewegenden Partikel das Problem im Verständnis der Starkfeldionisation ist. Zur korrekten Beschreibung des Ionisationsprozesses ist die genaue Kenntnis der Ionisationswahrscheinlichkeiten und der Tunnelgeometrie nötig. Die relevanten Startbedingungen für ein klassisches Ensemble von Elektronen sind die durch die Ionisationsrate gegebenen Ionisationszeiten und die aus der Tunnelgeometrie folgenden Positionen des Tunnelausganges und die Impulsverteilungen der Elektronen am Tunnelausgang. Nach der Ionisation wird die Elektronenbahn vom Laserfeld dominiert. Die Interaktion des Elektrons mit dem Coulombfeld des zurückbleibenden Ions führt zu einer kleinen Veränderung der Elektronenbahn. Die Stärke dieser Wechselwirkung hängt entscheidend von der Position des Tunnelausgangs ab.

Die experimentellen Ergebnisse haben gezeigt, dass aus den Impulsverteilungen Rückschlüsse auf die Ionisationsrate und den Tunnelausgang möglich sind.

Der mittlere Impuls der Elektronen gibt Aufschluss über die Stärke des Laserfeldes zum Zeit-

punkt der Ionisation und ermöglicht daher die Bestimmung der Ionisationszeit. Damit kann verfolgt werden, wie sich die Ionisationszeit bei Erhöhung der Laserintensität im Puls zeitlich nach vorne verschiebt. Diese Ergebnisse wurden mit Vorhersagen der Ionisationsraten verglichen. Es hat sich gezeigt, dass die quasistatische ADK-Rate die experimentellen Resultate nicht reproduzieren kann und besonders für hohe Intensitäten die Ionisationswahrscheinlichkeit überbewertet. Die mit Hilfe von Simulationen der zeitabhängigen Schrödingergleichung durch Tong und Lin aufgestellte korrigierte Rate liefert eine bessere Übereinstimmung. Dies zeigt, dass eine korrekte Ionisationsrate für das Verständnis der Ionisationsdynamik unerlässlich ist.

Der Einfluss des Coulombfeldes auf die Elektronentrajektorien wurde in Form einer Verdrehung des Maximums der Zählrate gegenüber der Laserpolarisation in den Impulsverteilungen beobachtet. Entgegen bisheriger experimenteller Beobachtungen wurde dabei ein Anstieg der Verdrehung bei Erhöhung der Laserintensität festgestellt. Weiterhin konnte gezeigt werden, dass die Stärke der Verdrehung von der Ladungszahl des Ions abhängt. Der Einfluss der Coulombwechselwirkung ist umso kleiner, je höher die Ladungszahl des zurück bleibenden Ions ist. Der Grund dafür ist, dass die Erhöhung des Ionisationspotentials den Effekt des stärkeren Coulombpotentials ausgleicht und den Ablenkwinkel reduziert.

Die Stärke der Wechselwirkung wird auch vom Feld der anderen Elektronen im Ion beeinflusst. Zur systematischen Untersuchung der Tunnelgeometrie in Abhängigkeit der Anzahl der Elektronen und der Polarisierbarkeit des atomaren Systems sollten diese Messungen mit Ionen wie  $\text{He}^+$ ,  $\text{Ar}^+$  und  $\text{Xe}^+$  wiederholt und verglichen werden. Das Edelgasion  $\text{He}^+$  ist dabei besonders interessant.  $\text{He}^+$  besitzt nur ein einzelnes Elektron. Es ist damit eines der wenigen atomaren Systeme für die quantenmechanischen Rechnungen möglich sind. Die Messungen der Ionisation von  $\text{He}^+$  mit elliptischer Polarisation wurden in dieser Arbeit begonnen. Eine umfassende Auswertung konnte durch die begrenzte Zeit noch nicht präsentiert werden.

Für die Mehrfachionisation wurde gezeigt, dass die Verteilung der Ionenimpulse einer Faltung der Impulsverteilungen aller während des Ionisationsprozesses emittierten Elektronen entspricht. Im Gegensatz zur Einfachionisation sind daher die Impulse der Elektronen nicht direkt aus den Impulsspektren der Ionen festzustellen. Es wurde eine Methode vorgeschlagen, um aus den Impulsverteilungen der Ionen die Impulsverteilungen der Elektronen zu rekonstruieren. Dies ermöglicht, Rückschlüsse auf die Ionisationszeiten aller Ionisationsschritte im Prozess der mehrfachen sequentiellen Ionisation zu bestimmen.

Ein Vergleich der Ergebnisse der mehrfachen Ionisation mit theoretischen Vorhersagen ist ein anspruchsvolles Problem. Erstens gibt es für die höheren Ladungszustände keine Korrekturanlagen für die Berechnung der korrekten Ionisationsraten, da bisher wenige Messungen für Un-

tersuchung der Ionisation mit Ionen existieren. Zweitens wird durch jeden Ionisationsschritt im zurück bleibenden Ion eine kohärente Bewegung in der Elektronenhülle ausgelöst, die die Ionisationswahrscheinlichkeit der darauffolgenden Ionisationen zeitabhängig moduliert. Für eine korrekte Beschreibung der Mehrfachionisation muss daher diese Multielektronendynamik berücksichtigt werden.

Zur experimentellen Untersuchung dieser Dynamik wäre es ideal ein Target mit veränderlicher Ladungszahl zu haben, das erlaubt, die Ionisationsdynamik in Abhängigkeit der Anzahl der Elektronen des Ions zu untersuchen. Damit wäre es möglich, ausgehend von verschiedenen Startladungszuständen des Ionenstrahles durch Vergleich der Ionisationsprozesse, die zum selben Ladungszustand führen, die Effekte der Einfachionisation in der Ionisationsdynamik von denen der mehrfachen Ionisation zu separieren.

# Literaturverzeichnis

- [1] C. Vozzi, M. Negro, and S. Stagira, *Journal of Modern Optics* **59**, 1283 (2012). 1
- [2] P. Corkum, *Physical Review Letters* **71**, 1994 (1993). 1
- [3] G. G. Paulus, H. Walther, W. Becker, F. Grasbon, R. Kopold, and D. B. Milosevic, *Advances In Atomic, Molecular, And Optical Physics, Vol 48* **48**, 35 (2002). 1, 4, 7
- [4] B. Walker, B. Sheehy, and L. DiMauro, *Physical Review Letters* **73**, 0 (1994). 1
- [5] W. Becker, X. Liu, P. Ho, and J. Eberly, *Reviews of Modern Physics* **84**, 1011 (2012). 1
- [6] F. Krausz, *Reviews of Modern Physics* **81**, 163 (2009). 1
- [7] M. Y. Ivanov, M. Spanner, and O. Smirnova, *Journal of Modern Optics* **52**, 165 (2005). 2, 5
- [8] A. N. Pfeiffer, C. Cirelli, M. Smolarski, D. Dimitrovski, M. Abu-samha, L. Madsen, and U. Keller, *Nature Physics* **8**, 76 (2011). 2, 13, 23, 75, 80
- [9] X. M. Tong and C. D. Lin, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **38**, 2593 (2005). 2, 6, 68
- [10] A. Pfeiffer, C. Cirelli, M. Smolarski, R. Dörner, and U. Keller, *Nature Physics* **7**, 428 (2011). 2, 23, 27, 28, 60, 64, 74
- [11] A. N. Pfeiffer, C. Cirelli, M. Smolarski, X. Wang, J. H. Eberly, R. Dörner, and U. Keller, *New Journal of Physics* **13**, 093008 (2011). 2, 60, 83
- [12] Y. Zhou, C. Huang, Q. Liao, and P. Lu, *Physical Review Letters* **109**, 1 (2012). 2
- [13] X. Wang and J. H. Eberly, *Physical Review A* **86**, 013421 (2012). 2, 23, 28, 49, 60
- [14] X. Wang, J. Tian, A. Pfeiffer, and C. Cirelli, *arXiv preprint arXiv: 1208.1516v1* , 3 (2012). 2

- 
- [15] A. Fleischer, H. Wörner, L. Arissian, L. Liu, M. Meckel, A. Rippert, R. Dörner, D. Villeneuve, P. Corkum, and A. Staudte, *Physical Review Letters* **107**, 7 (2011). 2
- [16] C. Maharjan, a. Alnaser, X. Tong, B. Ulrich, P. Ranitovic, S. Ghimire, Z. Chang, I. Litvinyuk, and C. Cocke, *Physical Review A* **72**, 041403 (2005). 3, 7, 23, 27
- [17] A. N. Pfeiffer, C. Cirelli, M. Smolarski, and U. Keller, *Chemical Physics* **414**, 84 (2013). 3, 23, 52
- [18] H. Akagi, T. Otobe, A. Staudte, A. Shiner, F. Turner, R. Dörner, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *Science (New York, N.Y.)* **325**, 1364 (2009). 3
- [19] L. Keldysh, *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965). 5, 73
- [20] Z. Chang, *Fundamentals of Attosecond Optics*, CRC Press Taylor & Francis Group, LLC, 2011. 6
- [21] G. Yudin and M. Ivanov, *Physical Review A* **64**, 6 (2001). 6
- [22] D. Bauer and P. Mulser, *Physical Review A* **59**, 569 (1999). 6, 15
- [23] V. S. Popov, *Physics-Uspekhi* **47**, 855 (2004). 6
- [24] a. Becker, L. Plaja, P. Moreno, M. Nurhuda, and F. Faisal, *Physical Review A* **64**, 023408 (2001). 7
- [25] N. Shvetsov-Shilovski, D. Dimitrovski, and L. Madsen, *Physical Review A* **85**, 1 (2012). 9, 11, 13, 74
- [26] L. Landau and E. Lifschitz, *Lehrbuch der Theoretischen Physik*, Akademie-Verlag Berlin, 1979. 9, 11
- [27] N. Delone and V. Krainov, *JOSA B* **8**, 1207 (1991). 12
- [28] D. Dimitrovski, C. P. J. Martiny, and L. B. Madsen, *Physical Review A* **82**, 053404 (2010). 13
- [29] C. Z. Bisgaard and L. B. Madsen, *American Journal of Physics* **72**, 249 (2004). 13
- [30] R. Shakeshaft, R. Potvliege, M. Dörr, and W. Cooke, *Physical Review A* **42** (1990). 15
- [31] C. Joachain, N. Kylstra, and R. Potvliege, *Atoms in Intense Laser Fields*, Cambridge University Press, 2012. 17

- [32] D. Strickland and G. Mourou, *Optics Communications* **56**, 219 (1985). 17
- [33] B. Saleh, M. Teich, and B. Saleh, *Fundamentals of photonics*, John Wiley & Sons, Inc., 1991. 17, 18, 20
- [34] W. Bludau, *Lichtwellenleiter in Sensorik und optischer Nachrichtentechnik*, Springer Verlag, 1998. 18
- [35] P. Eckle, M. Smolarski, P. Schlup, J. Biegert, A. Staudte, M. Schöffler, H. G. Müller, R. Dörner, and U. Keller, *Nature Physics* **4**, 565 (2008). 23, 73
- [36] L. Arissian, C. Smeenk, F. Turner, C. Trallero, a. Sokolov, D. Villeneuve, a. Staudte, and P. Corkum, *Physical Review Letters* **105**, 1 (2010). 27
- [37] U. J. R. Moshhammer, A. Dorn, R. D. Rner, L. P. H. Schmidt, H. Schmidt, and Cking, **1463** (2003). 27, 42
- [38] I. Ben-Itzhak, P. Q. Wang, J. F. Xia, A. M. Sayler, M. A. Smith, K. D. Carnes, and B. D. Esry, *Physical Review Letters* **95** (2005). 27, 35
- [39] T. Rathje, A. M. Sayler, S. Zeng, P. Wustelt, H. Figger, B. D. Esry, and G. G. Paulus, *Physical Review Letters* **111**, 093002 (2013). 27
- [40] A. T. J. B. Eppink and D. H. Parker, *Review of Scientific Instruments* **68**, 3477 (1997). 28
- [41] P. Wustelt, *Erzeugung eines Ionenstrahls mittels einer Duoplasmatron-Ionenquelle*, Bachelorarbeit, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2011. 29
- [42] M. von Ardenne, *Tabellen der Elektronenphysik, Ionenphysik und Übermikroskopie Band II*, Deutscher Verlag der Wissenschaften Berlin, 1956. 29, 41
- [43] C. Wunderlich, H. Figger, and T. W. Ha, *Physical Review A* **62**, 1 (2000). 29
- [44] R. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, J. Ullrich, and H. Schmidt-Böcking, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **108**, 425 (1996). 37
- [45] M. Odenweller, *Untersuchung der Ionisation von Wasserstoffmolekülonen in starken Laserfeldern*, 2010. 37
- [46] R. H. GmbH, *The fADC8 fast sampling ADC unit*. 37

- 
- [47] M. Schmidt, H. Peng, G. Zschornack, and S. Sykora, *Review of scientific instruments* **80**, 063301 (2009). 41
- [48] X. Wang and J. H. Eberly, *New Journal of Physics* **12**, 093047 (2010). 49
- [49] X. Wang and J. H. Eberly, *The Journal of chemical physics* **137**, 22A542 (2012). 49
- [50] P. Wang, A. M. Sayler, K. D. Carnes, B. D. Esry, and I. Ben-Itzhak, *Optics Letters* **30**, 664 (2005). 67
- [51] N. Rohringer and R. Santra, *Physical Review A* **79**, 053402 (2009). 70
- [52] E. Goulielmakis, Z.-H. Loh, A. Wirth, R. Santra, N. Rohringer, V. S. Yakovlev, S. Zhe-rebtsov, T. Pfeifer, A. M. Azzeer, M. F. Kling, S. R. Leone, and F. Krausz, *Nature* **466**, 739 (2010). 70
- [53] H. Wen, S. Pisharody, J. Murray, and P. Bucksbaum, *Physical Review A* **73**, 052504 (2006). 70
- [54] H. J. Wörner and P. B. Corkum, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **44**, 041001 (2011). 70
- [55] A. Kramida, T. Bastin, and E. Biémont, *Eur. Phys. J.* **565**, 547 (1999). 72
- [56] Eckle and Pfeiffer, **322**, 1525 (2008). 75
- [57] I. a. Ivanov and a. S. Kheifets, *Physical Review A* **87**, 033407 (2013). 75
- [58] V. P. Shevelko and A. Vinogradov, *Physica Scripta* **275** (1979). 80, 81
- [59] X. Wang, J. Tian, and J. H. Eberly, *Physical Review Letters* **110**, 073001 (2013). 83

# Danksagung

Als erstes geht mein Dank an Prof. Gerhard G. Paulus, der mir die Möglichkeit gab, diese Arbeit am Institut für Optik und Quantenelektronik durchführen zu können.

Mein Dank gilt Max Möller, Dr. Tim Rathje und Dr. Max Saylor für die vielseitige Unterstützung bei der Durchführung der Experimente und die guten Ratschläge zur Auswertung der Messdaten.

# Eidesstattliche Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel genutzt habe. Seitens des Verfassers bestehen keine Einwände, die vorliegende Diplomarbeit für die öffentliche Nutzung in der Thüringer Universitäts- und Landesbibliothek zur Verfügung zu Stellen.

Jena, den 2. Dezember 2013      Philipp Wustelt