

Einfluss dynamischer Resonanzen auf die Wechselwirkung optischer Femtosekunden-Pulse mit transparenten Dielektrika

vorgelegt von

M. SC.

MICHAEL HOFMANN

geb. in Berlin

von der Fakultät II – Mathematik und Naturwissenschaften
der Technischen Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades

DOKTOR DER NATURWISSENSCHAFTEN

– DR. RER. NAT. –



GENEHMIGTE DISSERTATION

Promotionsausschuss:

Vorsitzende:

Prof. Dr. Janina Maultzsch

Gutachter:

Prof. Dr. Andreas Knorr

Gutachter:

Priv. Doz. Dr. Uwe Bandelow

Tag der wissenschaftlichen Aussprache:

30. August 2016

Berlin 2016

KURZDARSTELLUNG

Bei der linearen Wechselwirkung eines Mediums mit einem optischen Puls geht man davon aus, dass die induzierte, dielektrische Polarisierung verzögerungsfrei dem elektrischen Feld folgt, falls die fundamentale Wellenlänge fernab einer Resonanz liegt. Bei höheren Intensitäten – im Bereich der nicht-linearen Optik – können jedoch durch die Erzeugung harmonischer Frequenzen oder durch die Stark-Verschiebung der Energieniveaus im Laserfeld unerwartete Resonanzen auftreten. Die von mir in dieser Arbeit durchgeführten, quantenmechanischen Simulationen für Titandioxid und atomaren Wasserstoff bestätigen solche dynamischen Resonanzen, die sich unter Variation der Wellenlänge bzw. der Intensität verschieben. Meine numerischen Ergebnisse untermauern die Messung einer der kürzesten, bisher nachgewiesenen Verzögerungen der Polarisierung in transparenten Dielektrika. Des Weiteren kann unter Berücksichtigung von Resonanzeffekten das bisher gängige, phänomenologische Modell der Femtosekunden-Filamente in atomaren Gasen um eine quantenmechanisch berechnete Ionisierungsrate erweitert werden.

ABSTRACT

It is expected that during the linear interaction of a medium with an optical pulse the induced dielectric polarization follows the electric field instantaneously, if the fundamental wavelength is far away from any resonance. However, with increasing intensity – in the regime of nonlinear optics – unexpected resonances may occur through the generation of higher harmonics or by the ac Stark shift of the energy levels in the laser field. For this work I perform quantum mechanical simulations of titanium dioxide and atomic hydrogen which confirm the existence of dynamic resonances by variation of the laser field's wavelength or intensity. My numerical results corroborate the measurement of one of the shortest polarization delays in dielectric solids that were reported at near-infrared wavelengths. Furthermore, by considering the detected resonance effects the established phenomenological model of femtosecond filamentation in atomic gases can be extended by a quantum mechanically computed ionization rate.

PUBLIKATIONEN

Im Rahmen der Promotion sind drei Veröffentlichungen in Erstautorenschaft entstanden, welche die Grundlage dieser kumulativen Dissertation bilden. Im Anhang [A](#), [B](#) und [C](#) ist ein Abdruck der jeweiligen Publikation zu finden.

- [A] M. Hofmann, J. Hyyti et al., „Noninstantaneous polarization dynamics in dielectric media“, *Optica* **2**, 151 (2015).
- [B] M. Hofmann und C. Brée, „Femtosecond filamentation by intensity clamping at a Freeman resonance“, *Phys. Rev. A* **92**, 013813 (2015).
- [C] M. Hofmann und C. Brée, „Adiabatic Floquet model for the optical response in femtosecond filaments“, *J. Phys. B* **49**, 205004 (2016).

KONFERENZBEITRÄGE

Die Ergebnisse meiner Arbeiten habe ich auf folgenden, internationalen Konferenzen mit einem Vortrag (V) oder Poster (P) vorgestellt:

- [P1] „Probing the transient optical response in femtosecond filaments“, *Extreme Nonlinear Optics and Solitons*, Berlin, 28. Oktober 2013.
- [V1] „On the transient optical response of atomic gases“, *DPG-Frühjahrstagung*, Berlin, 20. März 2014.
- [V2] „On the Role of Freeman Resonances in Pump-Probe Measurements of the Nonlinear Refractive Index“, *Conference on Lasers and Electro-Optics*. San José, USA, 11. Mai 2015. Publiziert in *CLEO: 2015, OSA Technical Digest*.
- [V3] „On the Role of Freeman Resonances in Pump-Probe Measurements of the Nonlinear Refractive Index“, *European Conference on Lasers and Electro-Optics*. München, 22. Juni 2015. Publiziert in *2015 European Conference on Lasers and Electro-Optics – European Quantum Electronics Conference*.
- [V4] „Impact of Resonance-Enhanced Ionization on Femtosecond Filamentation“, *Nonlinear Photonics: Theory, Materials, Applications*. St. Petersburg, Russland, 2. Juli 2015.
- [V5] „Nonlinear refractive index in filaments governed by resonantly enhanced ionization“, *24th Annual International Laser Physics Workshop*. Shanghai, China, 24. August 2015.
- [P2] „Influence of resonantly enhanced ionization on femtosecond filamentation“, *Waves, Solitons and Turbulence in Optical Systems*. Berlin, 12. Oktober 2015.
- [V6] „Optical response in femtosecond filaments dominated by resonantly enhanced ionization“, *DPG-Frühjahrstagung*. Hannover, 2. März 2016.

Aber warum haben Sie mir Ihre Dissertation immer noch nicht geschickt? Wissen Sie denn nicht, dass ich einer von den $1\frac{1}{2}$ Kerlen sein würde, der dieselbe mit Interesse und Vergnügen durchliest, Sie Miserabler?

Albert Einstein an seinen Freund Conrad Habicht

DANKSAGUNG

Zu allerst möchte ich mich bei Professor Knorr bedanken, dass er es mir ermöglicht hat, als externer Doktorand bei ihm zu promovieren. Mein Dank gilt auch allen Kollegen der Forschungsgruppe *Laserdynamik* für die fachlichen als auch freundschaftlichen Gespräche sowie Uwe Bandelow, der als Forschungsgruppenleiter dafür gesorgt hat, dass die zeitlichen Mühen dieser Promotion im Rahmen bleiben. Zu ganz besonderem Dank bin ich meinem wissenschaftlichen Betreuer Carsten Brée verpflichtet. Für die von ihm eingeworbene Promotionsstelle bin ich an das Weierstraß-Institut gekommen und habe mit ihm zusammen am DFG-Projekt *ab-initio description of optical nonlinearities in femtosecond filaments* gearbeitet. Seine ununterbrochene Bereitschaft, Fragen zu beantworten und unverständliche Sachverhalte zu erklären, erleichterten mir die Einarbeitung in das mir neue Forschungsfeld der nichtlinearen Optik. Ohne seine Ideen und Impulse sowie die konstruktiven Diskussionen hätte ich meine eigenen Leistungen nicht erbringen können.

Bedanken möchte ich mich zudem bei Kollegen und Freunden für die gemeinsamen, inspirierenden Mittagspausen, allen voran Thilo und Uli. Ein großes Lob gilt meinem Freund Sven, der in einer Nacht-und-Nebel-Aktion mein Manuskript von Rechtschreibfehlern und Missverständnissen befreit hat. Einen besonderen Platz nimmt meine Familie ein. Ohne meine Anne – ihr Verständnis und ihre Unterstützung besonders in den letzten Monaten – wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen. Sie und unser gemeinsamer Sohn Otto schenken mir zahlreiche Augenblicke des Glücks und motivieren mich meine Ziele zu erreichen.

INHALTSVERZEICHNIS

<i>Kurzdarstellung</i>	iii
<i>Liste eigener Publikationen</i>	v
<i>Danksagung</i>	vii
1 EINLEITUNG	1
2 THEORETISCHE GRUNDLAGEN	7
2.1 Propagation von kurzen Laserpulsen	7
2.1.1 <i>Mathematische Beschreibung eines Laserpulses</i>	8
2.1.2 <i>Propagationsgleichungen</i>	9
2.1.3 <i>Phänomenologisches Filamentationsmodell</i>	11
2.2 Quantenmechanische Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung	13
2.2.1 <i>Kopplung der elektromagnetischen Potentiale an die Hamiltonfunktion</i>	13
2.2.2 <i>Längen- und Geschwindigkeitseichung in der Schrödingergleichung</i>	14
2.3 Eigenzustände eines Atoms im Laserfeld	15
2.3.1 <i>Dynamische Stark-Verschiebung</i>	16
2.3.2 <i>Floquet-Theorem</i>	17
2.3.3 <i>Ionisierende Randbedingungen</i>	18
2.4 Elektronendynamik in dielektrischen Festkörpern	20
2.4.1 <i>Direktes und reziprokes Gitter</i>	20
2.4.2 <i>Bloch-Theorem</i>	20
2.4.3 <i>Zeitabhängige Dynamik</i>	21
2.4.4 <i>Strom- und Polarisationsdichte</i>	22
3 NUMERISCHE METHODEN	25
3.1 Lösung der eindimensionalen Schrödingergleichung	26
3.1.1 <i>Cayley-Form des Propagationsoperators</i>	26
3.1.2 <i>Split-step-Verfahren für die nichtlineare Schrödingergleichung</i>	28

3.2	Dreidimensionale Behandlung der zeitabhängigen Schrödingergleichung	29
3.2.1	<i>Die Schrödingergleichung in Kugelkoordinaten</i>	29
3.2.2	<i>Separierung des Propagationsoperators</i>	31
3.2.3	<i>Norm und Polarisationsdichte</i>	32
4	ZUSAMMENFASSUNG DER PUBLIKATIONEN	35
4.1	Noninstantaneous polarization dynamics in dielectric media	35
4.2	Femtosecond filamentation by intensity clamping at a Freeman resonance	37
4.3	Adiabatic Floquet model for the optical response in femtosecond filaments	39
5	PUBLIKATIONSÜBERGREIFENDES FAZIT	43
	LITERATUR	45
	ANHANG	
A	NONINSTANTANEOUS POLARIZATION DYNAMICS IN DIELECTRIC MEDIA	A1
B	FEMTOSECOND FILAMENTATION BY INTENSITY CLAMPING AT A FREEMAN RESONANCE	B1
C	ADIABATIC FLOQUET MODEL FOR THE OPTICAL RESPONSE IN FEMTOSECOND FILAMENTS	C1

ABBILDUNGSVERZEICHNIS

Abbildung 1	Laborbild eines Femtosekunden-Filaments	3
Abbildung 2	Quasienergien des eindimensionalen Wasserstoffatoms nach komplexer Rotation	19
Abbildung 3	Bandstruktur von Titandioxid	36
Abbildung 4	Vergleich von selbstinduziertem und kreuzinduziertem Brechungsindex	38
Abbildung 5	Quasienergiespektrum eines Wasserstoffatoms in einem starken Laserfeld	40

EINLEITUNG

Physics would be dull and life most unfulfilling if all physical phenomena around us were linear. Fortunately, we are living in a nonlinear world. While linearization beautifies physics, nonlinearity provides excitement in physics.

Yuen-Ron Shen

Die Vorstellung von linearer Licht-Materie-Wechselwirkung beruht auf dem atomaren Bild fest gebundener Elektronen, welche durch ein äußeres, elektromagnetisches Feld zum Schwingen angeregt werden und dadurch selbst elektromagnetische Wellen erzeugen. Die Frequenz der ausgehenden Welle entspricht dabei der Frequenz des eingestrahlten Lichts. Zwar waren seit dem Ende des 19. Jahrhunderts nichtlineare Effekte in Elektro- und Magnetodynamik bekannt [1], doch die Reaktion eines Mediums auf rein optische Anregung verhielt sich linear in Bezug auf die Feldstärke. Mit der Realisierung des Lasers 1960 [2] änderte sich dies grundlegend. Nun standen bis dato unerreichbare Intensitäten ($> 10^3 \text{ W/cm}^2$) und Feldstärken zur Verfügung, welche die Elektronen in anharmonische Schwingung versetzen. Das Medium reagiert dadurch nichtlinear, d. h. das resultierende Licht enthält neben der Eingangsfrequenz auch harmonische Terme. Als Geburtsstunde der nichtlinearen Optik [1, 3] gilt daher die Erzeugung der zweiten Harmonischen eines Rubinlasers bei 347,2 nm in einem Quarzkristall 1961 [4] und die Publikation einer grundlegenden, perturbativen Theorie im Jahr darauf [5]. Demzufolge kann die Polarisationsdichte P als Reihenentwicklung in Potenzen des elektrischen Feldes E beschrieben werden, wobei die zugehörigen Koeffizienten $\chi^{(N)}$ als Suszeptibilitäten der Ordnung N bezeichnet werden und ihr Beitrag mit zunehmendem N abnimmt. So werden nichtlineare Mischprozesse wie z. B. die Frequenzverdopplung, die Bildung der Summen- und Differenzfrequenzen oder die optische Gleichrichtung durch die Suszeptibilität zweiter Ordnung beschrieben. Hier ist anzumerken, dass Prozesse zweiter Ordnung (und höherer, gerader Ordnungen) nur in Medien beobachtbar sind, welche keine Inversionssymmetrie besitzen. Flüssigkeiten, Gase und viele Kristalle besitzen jedoch ein Inversionzentrum [6]. Prozesse ungerader Ordnung treten hingegen sowohl in inversionssymmetrischen, als auch in nicht-inversionssymmetrischen Medien auf. Bedeuten-

*historische
Entwicklung der
nichtlinearen Optik*

de $\chi^{(3)}$ -Prozesse sind die Erzeugung der dritten Harmonischen, die optisch-parametrische Verstärkung, stimulierte Streuprozesse oder der optische Kerr-Effekt [7]. Letzterer induziert eine intensitätsabhängige Brechungsindexvariation transversal zur optischen Achse, sodass das Medium bei einem annähernd gaußförmigen Strahlprofil wie eine Linse wirkt und ein Puls sich selbstfokussiert. In den 1960er Jahren setzte ein wahrer Goldrausch ein, und bis zum Ende des Jahrzehnts waren die grundlegenden Effekte der nichtlinearen Optik entdeckt [3, 7, 8]. Um die Effizienz nichtlinearer Effekte zu erhöhen, war man – neben der Entwicklung geeigneter Materialien – daran interessiert, die Intensität der Laserpulse zu erhöhen. Gleichzeitig wurden die Pulse immer kürzer. Vor allem die Modenkopplung [9, 10] hat wesentlich dazu beigetragen, die Pulsdauer vom Nano- bis in den Femtosekundenbereich zu verkürzen [11]. Die Integration einer selbstfokussierenden Kerr-Linse in einen Ti:Saphir-Laser [12] führt zu einer besonders effizienten, passiven Modenkopplung (*self-mode-locking*). Wird zusätzlich die Dispersion der Gruppengeschwindigkeit kompensiert, so erhält man heutzutage Pulslängen von unter zehn Femtosekunden [13, 14]. Mittels weiterer Kompressions- und Verstärkungsprozesse wie der *chirped pulse amplification* [15, 16] werden Intensitäten über 10^{14} W/cm^2 erreicht, die der Coulomb-Bindung der Elektronen entsprechen oder diese sogar weit übersteigen. Bei solch starken Feldern (*strong-field regime*) ist der perturbative Ansatz einer Potenzreihenentwicklung nicht länger aufrecht zu erhalten [14]. Hier wird die Polarisationsdichte vor allem durch ionisierte, freie Elektronen bestimmt und der Beitrag gebundener Elektronen ist dagegen klein. Rekombiniert ein ionisiertes Elektron mit dem Eltern-Ion, so entsteht hohe harmonische Strahlung mit – im Gegensatz zum perturbativen Regime – nahezu konstanter Konversionseffizienz über mehrere, höhere Ordnungen. Durch die sehr kurze Rekombinationszeit lassen sich Attosekunden-Pulse mit einer Wellenlänge im extremen Ultravioletten (10–121 nm) erzeugen, die lediglich aus einigen wenigen optischen Zyklen bestehen [17, 18]. Hohe Intensitäten verbunden mit extrem kurzen Pulsen eröffnen ein neues Feld der nichtlinearen Optik, bei der nichtlineare Effekte nicht nur von der Intensität, sondern auch von der zugrunde liegenden Trägerschwingung abhängig sind (*carrier-wave nonlinear optics*) [19].

Resonanzen in
Femtosekunden-
Filamenten

Der Fokus dieser Arbeit liegt auf dem intermediären Regime zwischen perturbativer Beschreibung und dem Fall starker Felder. In diesem Regime ist die Wirkung von atomaren Nichtlinearitäten in etwa so groß wie die der nichtlinearen Ionisation und man beobachtet unter anderem das Phänomen der Filamentation, siehe Abbildung 1. Übersteigt die Pulsleistung eine kritische Schwelle, so dominiert die Selbstfokussierung über Diffraction und Dispersion. Es droht ein Puls kollaps, welcher aber durch den defokussierenden Effekt einsetzender Ionisierung verhindert wird [20]. In Folge propagiert der Puls mit konstanter Intensität weit über die Rayleighlänge hinaus, bis zu mehrere Meter oder gar Kilometer. Solche sich selbst führenden La-

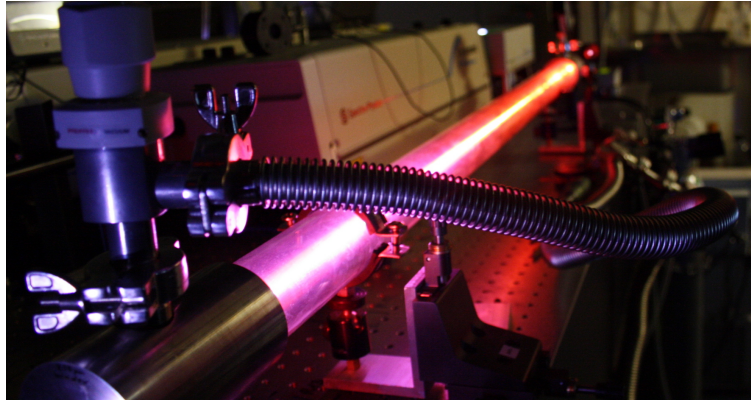


Abbildung 1: Ein circa 80 cm langes Femtosekunden-Filament in einer mit Argon gefüllten Glasröhre am Max-Born-Institut in Berlin, © Carsten Brée.

serpule entdeckte man bereits in den 1960er Jahren in Flüssigkeiten und Festkörpern, wo sie eine schmale Spur hinterließen, und bezeichnete sie daher als Filamente [21, 22]. Aufgrund der hohen Ionisationsverluste propagierten diese nur wenige Mikrometer mit der Eigenschaft, nichtlineare Kristalle ernsthaft zu beschädigen. Daher galten Filamente lange Zeit als ein Nebeneffekt, den man vermeiden wollte [23]. Größeres wissenschaftliches Interesse erwuchs erst aus der Beobachtung von Filamenten in Gasen 30 Jahre später [24], ermöglicht durch die Entwicklung hoch-intensiver Femtosekunden-Pulse. Mit längeren Pulsen war die Erzeugung von Filamenten in Gasen nicht möglich, da einerseits die Leistung nicht ausreichte die kritische Schwelle zu übertreten, andererseits der selbstfokussierte Puls kollabierte, d. h. dass eine lawinenartige Ionisierung dem Puls die gesamte Energie entzog. Bei Femtosekunden-Pulsen hingegen bleibt die Plasmadichte gering, da die Zeitskala der Stoßionisation im Bereich von Pikosekunden liegt [25]. Erreicht die Intensität einen zu hohen Wert, wird der Puls durch das Plasma defokussiert bevor er kollabieren kann. Dadurch wird einerseits die Intensität im Filament beschränkt (*intensity clamping*), andererseits bildet sich um die optische Achse ein Energiereservoir aus, welches die Ionisationsverluste im Filamentkern durch Refokussierung ausgleicht [26]. Intensitäten bis zu 10^{14} W/cm^2 führen zu nichtlinearen Phänomenen in Femtosekunden-Filamenten (*filament nonlinear optics*). Dazu gehören Superkontinuumerzeugung, Erzeugung höherer Harmonischer oder die Pulskompression [27]. Da Filamente in Luft einige Kilometer weit propagieren können, sind sie zudem für die Ferndetektion von toxischen Substanzen oder die Fernerzeugung von Terahertzstrahlung interessant [23]. Die theoretische Beschreibung von Femtosekunden-Filamenten beruht auf den Maxwell-Gleichungen und einem phänomenologischen Modell der Licht-Materie-Wechselwirkung. In letzterem wird angenommen, dass ionisierte Elektronen sich wie ein freies Elektronengas verhalten und nicht mit den Ionen wechselwirken. Die Ionisierung folgt dabei einer Ratengleichung nach der Keldysh-Theorie bzw. der Arbeit von Perelomov-Popov-Terentjev (PPT) [27]. Gebundene Elektro-

nen tragen über die Suszeptibilität dritter Ordnung zur nichtlinearen Polarisationsdichte bei. Obwohl durch dieses sogenannte konventionelle Modell oder Standardmodell erfolgreich Filamente simuliert werden konnten, wurde es vor einigen Jahren durch ein Pump-Probe-Experiment von Loriot et al. in Frage gestellt [28], in welchem man die durch den Pump-Puls induzierte Doppelbrechung in verschiedenen Gasen untersuchte. Da ein freies, nicht-relativistisches Elektronenplasma keine Doppelbrechung aufweist, wollte man so den rein elektronisch induzierten Brechungsindex ermitteln. Negative Anteile im gemessenen, heterodynem Signal deuteten jedoch auf einen defokussierenden Anteil im Brechungsindex hin. Sich berufend auf numerische Arbeiten, welche eine Sättigung des Brechungsindex durch Suszeptibilitäten höherer Ordnungen vorhersagten, schlussfolgerten die Forscher, dass ebensolche Terme für die Beobachtungen verantwortlich seien und im Kerr-Effekt berücksichtigt werden müssten. Es folgte eine hitzige Debatte über diesen postulierten *higher-order Kerr-Effekt* (HOKE), welche kein einheitliches Ergebnis brachte. Einige Arbeiten bestätigten ein neues Paradigma der (plasmafreien) Filamentation [29–31], andere widerlegten den Einfluss höherer, nichtlinearer Ordnungen [32–34]. Obwohl das HOKE-Modell bisher nicht überzeugen konnte, so erneuerte es doch den Blick auf das Standardmodell und seine Annahmen, z. B. einer perturbativen Nichtlinearität fernab von Resonanzen. Die Entwicklung der Polarisationsdichte in eine Taylor-Reihe ist für Intensitäten der Größenordnung 10^{12} W/cm^2 eine gute Näherung [3]. Innerhalb eines Filaments wird dieser Wert jedoch schnell überschritten und die perturbative Beschreibung bricht zusammen [14, 35]. Da somit eine analytische Beschreibung der Polarisationsdichte fehlt, ist man im intermediären Regime auf die numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung angewiesen. Erste Rechnungen belegen den Einfluss bisher vernachlässigter Phänomene auf die Nichtlinearitäten in Filamenten, wie z. B. die Population in Rydbergzuständen [36] oder die Formation von Kramers-Henneberger-Atomen [37]. Prinzipiell müsste eine vollständige, quantenmechanische Beschreibung von Filamenten die Maxwell-Gleichungen mit der Schrödingergleichung koppeln [38]. Der benötigte Rechenaufwand ist aber enorm und für längere Propagationssimulationen unrealistisch. Ziel kürzlich erschienener Publikationen ist es daher, die quantenmechanische Berechnung zu beschleunigen [39, 40] oder alternative Modelle der Licht-Materie-Wechselwirkung zu erarbeiten [41]. Hier reiht sich diese Dissertation ein. In Publikation [B] wird gezeigt, dass in einem Filament dynamische Resonanzen auftreten und dessen Propagation beeinflussen. Die Ionisation wird durch solche Resonanzen extrem verstärkt und dominiert dadurch den Brechungsindex. Letzterer lässt sich durch den linearen Kerr-Effekt und – in guter Näherung zur tatsächlichen Ionisation – durch den Verlust der Grundzustandspopulation modellieren. Basierend auf dieser Beobachtung wird in Publikation [C] ein adiabatisches Ionisationsmodell präsentiert, welches die beschriebenen Resonanzeffekte enthält und die

Ionisation sowie den induzierten, nichtlinearen Brechungsindex für hinreichend lange Pulse (einige 100 fs) korrekt beschreibt. Die so berechnete Ionisierungsrate lässt sich einfach in das Standardmodell integrieren, sodass bestehende Propagationscodes weiterhin benutzt werden können.

Das zweite Thema meiner Dissertation handelt von der Polarisationsverzögerung in Festkörpern. Im perturbativen Regime bleibt die Ionisationswahrscheinlichkeit gering, und der Beitrag zur Polarisationsdichte ist fast ausschließlich elektronischen Ursprungs. Auf der Zeitskala eines Femtosekunden-Pulses können die Nichtlinearitäten dann – fern von Resonanzen – als instantan angenommen werden, da die Reaktionszeit der Elektronen in diesem Fall viel kleiner als die Pulsdauer ist [14]. Diese Annahme ist unter anderem essentiell für die Konstruktion von Lasern, aber auch für nichtlineare Pulscharakterisierungsverfahren. Da die Zeitauflösung elektronischer Messverfahren nicht unter eine Pikosekunde gebracht werden kann, benutzt man optische Verfahren, bei denen der Puls mit sich selbst oder einem Referenzpuls in nichtlineare Wechselwirkung gebracht wird [42]. Zu diesen Verfahren zählen unter anderem die Autokorrelation [43], mit der sich die Breite des Intensitätsprofils eines Pulses bestimmen lässt. Andere Verfahren erlauben zudem die Rekonstruktion der Phase des elektrischen Feldes, wie z. B. SPIDER [44] (*spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction*), FROG [45] (*frequency-resolved optical gating*) oder d-scan [46]. Ist die Nichtlinearität jedoch verzögert, so wird in der Regel eine längere Pulsdauer gemessen. Im Umkehrschluss kann man mittels Charakterisierung eines bekannten Pulses auf eine Polarisationsverzögerung im Medium schließen. Messungen an einem interferometrischen FROG-Aufbau ergaben für die $\chi^{(3)}$ -Nichtlinearität in Titandioxid eine Verzögerung von circa fünf Femtosekunden [47]. Im Rahmen dieser Arbeit konnten die Ergebnisse numerisch bestätigt und in Publikation [A] veröffentlicht werden. Die Simulationen zeigen zudem, dass die dritte Harmonische überraschenderweise resonant mit einem Übergang in ein Leitungsband ist. Die Voraussetzungen für eine instantane Reaktion sind somit nicht erfüllt, wodurch sich die Verzögerung in Titandioxid erklärt.

Das folgende Kapitel beschäftigt sich mit den theoretischen Grundlagen, welche für das Verständnis der eingereichten Arbeiten vorausgesetzt, aber in diesen nicht explizit thematisiert werden. Anschließend folgt eine Beschreibung der numerischen Methoden zur Lösung der (zeitabhängigen) Schrödingergleichung. Kapitel 4 gibt einen Überblick über die dieser kumulativen Dissertation zu Grunde liegenden Publikationen und dokumentiert den jeweiligen Eigenanteil. Im letzten Kapitel werden die Ergebnisse in einem gemeinsamen Kontext zusammengefasst und bewertet. Die Originalpublikationen sind in den Anhängen A, B und C abgedruckt.

*Polarisations-
verzögerung in
Titandioxid*

*Gliederung der
Dissertation*

THEORETISCHE GRUNDLAGEN

In the present state of scientific knowledge, quantum mechanics plays a fundamental role in the description and understanding of natural phenomena. [...] For example, the existence and the properties of atoms, the chemical bond and the propagation of an electron in a crystal cannot be understood in terms of classical mechanics.

Claude Cohen-Tannoudji

Dieses Kapitel behandelt die wichtigsten, theoretischen Grundlagen zum Verständnis der eingereichten Publikationen. Zur Simulation von Femtosekunden-Filamenten benötigt man Kenntnis über die Reaktion eines Mediums auf eine optische Anregung. Gewöhnlich bedient man sich dabei eines phänomenologischen Modells der Polarisationsdichte. Zuerst skizziere ich, wie die Polarisationsdichte in die Propagationsgleichungen eingeht. Es folgt eine quantenmechanische Beschreibung der Licht-Materie-Kopplung für Einelektronensysteme und dielektrische Festkörper, welche für eine *ab initio*-Berechnung der Polarisationsdichte nötig ist. Die Entwicklung der atomaren Eigenzustände im Laserfeld (*dressed states*) lässt sich mit der Floquet-Theorie beschreiben. Diese erlaubt es unter Berücksichtigung von Übergängen ins Kontinuum eine intensitätsabhängige Ionisierungsrate zu errechnen.

2.1 PROPAGATION VON KURZEN LASERPULSEN

In dieser Sektion beschreibe ich den Übergang vom reellen zum komplexen elektrischen Feld und die Darstellung eines Laserpulses als Einhüllende plus Trägerschwingung. Anschließend skizziere ich nach [48] die Herleitung der Pulspropagationsgleichungen aus den Maxwell-Gleichungen. Die Themen *nichtlineare Optik* und *ultrakurze Pulse* werden sehr ausführlich in den Monographien von Boyd [6] und Diels [49] behandelt.

Fette Buchstaben
bezeichnen Vektoren
und Matrizen.

Die breite Tilde $\sim$
über einer Variablen
weist darauf hin,
dass es sich um ihre
Fourier-
Transformierte
handelt.

2.1.1 Mathematische Beschreibung eines Laserpulses

Im Folgenden sei hier nur die Zeitabhängigkeit des elektrischen Feldes betrachtet, $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(t)$. Sein Frequenzspektrum ist über die Fourier-Transformation $\mathcal{F}$ definiert,

$$\tilde{\mathbf{E}}(\omega) = \mathcal{F}\{\mathbf{E}(t)\} = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(t) e^{-i\omega t} dt, \quad (2.1)$$

$$\text{und } \mathbf{E}(t) = \mathcal{F}^{-1}\{\tilde{\mathbf{E}}(\omega)\} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\mathbf{E}}(\omega) e^{i\omega t} d\omega. \quad (2.2)$$

Für ein reelles, elektrisches Feld bedeutet dies nun, dass sein Frequenzspektrum auch negative Frequenzkomponenten enthält, da $\tilde{\mathbf{E}}(-\omega) = \tilde{\mathbf{E}}^*(\omega)$. Für viele Rechnungen ist es jedoch bequemer ein komplexes Feld zu verwenden, dessen Spektrum nur positive Frequenzen besitzt. Ein weiterer Vorteil ist z. B. das Fehlen von Nulldurchgängen im Betrag, sodass sein Inverses innerhalb der Pulsdauer wohl definiert ist. In dieser Sektion sei mit $\mathbf{E}$ also das komplexe, analytische Signal gemeint, welches sich formal über die Hilbert-Transformation $\mathcal{H}$ des reellen Feldes E_{Re} definiert,

$$\mathbf{E}(t) = E_{\text{Re}}(t) + i\mathcal{H}\{E_{\text{Re}}(t)\} = E_{\text{Re}}(t) + i \frac{1}{\pi t} \circ E_{\text{Re}}(t). \quad (2.3)$$

Nach Fourier-Transformation lässt sich das Faltungsintegral (hier mit $\circ$ angegeben) als Produkt darstellen. Mit $\mathcal{F}\{(\pi t)^{-1}\} = -i \operatorname{sgn}(\omega)$ ergibt sich

$$\tilde{\mathbf{E}}(\omega) = \mathcal{F}\{E_{\text{Re}}(t)\} + i\mathcal{F}\left\{\frac{1}{\pi t}\right\} \mathcal{F}\{E_{\text{Re}}(t)\} = \tilde{E}_{\text{Re}}(\omega) (1 + \operatorname{sgn}(\omega)) \quad (2.4)$$

wobei $\operatorname{sgn}(\omega)$ die Sprungfunktion ist. Negative Frequenzen liefern daher tatsächlich keine Beiträge mehr. Das reelle Signal erhält man durch Addition des komplex-konjugierten,

$$E_{\text{Re}}(t) = \frac{1}{2}(\mathbf{E}(t) + \mathbf{E}^*(t)) = \operatorname{Re}\{\mathbf{E}\}. \quad (2.5)$$

Das komplexe, elektrische Feld lässt sich allgemein beschreiben durch eine reelle Amplitudenfunktion und einen Phasenfaktor,

$$\mathbf{E}(t) = |\mathbf{E}(t)| e^{i\Gamma(t)}. \quad (2.6)$$

Ist die Bandbreite $\Delta\omega$ viel kleiner als die mittlere Frequenz ω_0 , so ist es sinnvoll Gleichung (2.6) umzuschreiben als das Produkt einer Einhüllenden $\mathcal{E}(t)$ mit einer Trägerschwingung bei ω_0 . Hierbei gilt $\Gamma(t) = \omega_0 t + \phi(t)$ und

$$\mathbf{E}(t) = \mathcal{E}(t) e^{i\omega_0 t} \quad \text{mit} \quad \mathcal{E}(t) = |\mathbf{E}(t)| e^{i\phi(t)}. \quad (2.7)$$

Dabei wird oft angenommen, dass die Trägerfrequenz dort zu finden ist, wo das Spektrum sein Maximum hat. Eine geeignetere Definition liefert das intensitätsgewichtete Mittel, das – in Analogie zur Mechanik – *center of gravity* genannt wird,

$$\omega_0 = \langle \omega \rangle = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \omega |\tilde{\mathbf{E}}(\omega)|^2 d\omega}{\int_{-\infty}^{+\infty} |\tilde{\mathbf{E}}(\omega)|^2 d\omega}. \quad (2.8)$$

Die zusätzliche Phase $\phi(t)$ bestimmt die instantane Frequenz, welche gegeben ist durch

$$\omega(t) \equiv \frac{d}{dt}\Gamma(t) = \omega_0 + \frac{d}{dt}\phi(t). \quad (2.9)$$

Die Annahme einer Trägerfrequenz ist also dann sinnvoll, wenn $\frac{d}{dt}\phi(t)$ klein gegenüber ω_0 ist. Eine zeitliche (und auch räumliche) Änderung der Frequenz nennt man *chirp*, welcher durch die zweite Ableitung von $\phi(t)$ bestimmt wird. Phase ϕ und reelle Einhüllende $|E|$ werden in der komplexen Einhüllenden zusammengefasst. Für letztere gilt

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(t) = E(t) e^{-i\omega_0 t} &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(\omega) e^{i(\omega - \omega_0)t} d\omega \\ &\stackrel{\omega \rightarrow \omega + \omega_0}{=} \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(\omega + \omega_0) e^{i\omega t} d\omega. \end{aligned} \quad (2.10)$$

Man erhält $\mathcal{E}(t)$ also aus der Rücktransformation des um $-\omega_0$ verschobenen Spektrums $\tilde{E}(\omega)$. Die Dauer eines Pulses t_p wird als Halbwertsbreite des Intensitätsprofils $I \sim |\mathcal{E}|^2$ angegeben und ist abhängig von der Bandbreite $\Delta\omega$. Dabei ist das Zeit-Bandbreiten-Produkt $t_p \Delta\omega$ nach unten beschränkt¹ und nimmt den kleinsten Wert an, wenn der Puls eine glatte, spektrale Phase besitzt. Solch ein Puls wird als Fourier-limitierter Puls bezeichnet. Betrachtet man nun zusätzlich die Ortsabhängigkeit und nimmt an, dass diese analog zu (2.7) als Einhüllende und einer Trägerschwingung mit dem zentralen Wellenvektor k_0 dargestellt werden kann, dann gilt für das komplexe, elektrische Feld

$$E(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}(\mathbf{r}, t) e^{i(\omega_0 t - \mathbf{k}_0 \mathbf{r})}. \quad (2.11)$$

2.1.2 Propagationsgleichungen

Die Maxwell-Gleichungen beschreiben die Dynamik elektromagnetischer Felder und somit auch die Propagation optischer Pulse. Für große Propagationsgebiete kann die numerische Behandlung jedoch schnell unhandlich bis nahezu unmöglich werden. Für Simulationen benutzt man daher Propagationsgleichungen, die die speziellen Eigenschaften eines gepulsten Laserstrahls ausnutzen und aus den makroskopischen Maxwell-Gleichungen hergeleitet werden. Diese lauten in ihrer differentiellen Form

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} - \nabla \cdot \mathbf{P}, \quad \nabla \cdot \mathbf{B} = 0, \quad (2.12)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad \nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \left(\mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \right). \quad (2.13)$$

Hierbei ist ρ die Dichte freier Ladungen, $\mathbf{J}$ deren Stromdichte und $\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$ die dielektrische Verschiebung. Die Polarisationsdichte $\mathbf{P}$ wird von dem

¹ Der genaue Wert ist abhängig von der Pulsform.

elektrischen Feld induziert und hängt mit ihm über die Suszeptibilität χ zusammen,

$$\tilde{\mathbf{P}}(\omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) \tilde{\mathbf{E}}(\omega) \quad \text{und} \quad \mathbf{P}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^t \chi(t-t') \mathbf{E}(t') dt'. \quad (2.14)$$

Die optische Antwort eines Mediums zur Zeit t ist somit kausal mit vergangenen Werten $\mathbf{E}(t' < t)$ verbunden. Nur in einem dispersionslosen Medium ist die Polarisierung instantan, also $\mathbf{P}(t) = \epsilon_0 \chi \mathbf{E}(t)$. Im perturbativen Regime kann $\tilde{\mathbf{P}}$ in eine Taylorreihe entwickelt sowie in einen linearen und nichtlinearen Anteil im Bezug zur Feldstärke zerlegt werden,

$$\tilde{\mathbf{P}} = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} + \chi^{(2)} |\tilde{\mathbf{E}}| + \chi^{(3)} |\tilde{\mathbf{E}}|^2 + \dots \right) \tilde{\mathbf{E}} = \tilde{\mathbf{P}}^{(1)} + \tilde{\mathbf{P}}_{\text{NL}}. \quad (2.15)$$

Mit der Beziehung zwischen Suszeptibilität und linearem Brechungsindex, $\chi^{(1)}(\omega) = n_o(\omega)^2 - 1$ gilt dann für die dielektrische Verschiebung

$$\tilde{\mathbf{D}} = \epsilon_0 n_o(\omega)^2 \tilde{\mathbf{E}} + \tilde{\mathbf{P}}_{\text{NL}}. \quad (2.16)$$

Aus dem Induktions- und dem Durchflutungsgesetz (2.13) lassen sich nun die Propagationsgleichungen für Laserpulse herleiten. Durch die Anwendung von $\nabla \times (\nabla \times \tilde{\mathbf{E}}) = \nabla(\nabla \cdot \tilde{\mathbf{E}}) - \nabla^2 \tilde{\mathbf{E}}$ erhält man die vektorielle Wellengleichung

$$\nabla^2 \tilde{\mathbf{E}} - \nabla(\nabla \cdot \tilde{\mathbf{E}}) + \frac{\omega^2}{c^2} n_o^2(\omega) \tilde{\mathbf{E}} = -\mu_0 \omega^2 \tilde{\mathbf{P}}_{\text{NL}}. \quad (2.17)$$

Hierbei wurde der Beitrag freier Elektronen $\tilde{\mathbf{J}}$ in die nichtlineare Polarisationsdichte $\tilde{\mathbf{P}}_{\text{NL}}$ miteinbezogen und kann jederzeit durch die Substitution $\tilde{\mathbf{P}}_{\text{NL}} \rightarrow \tilde{\mathbf{P}}_{\text{NL}} + \frac{i}{\omega} \tilde{\mathbf{J}}$ wiederhergestellt werden.

Nun ist es für einen in z -Richtung propagierenden Puls berechtigt anzunehmen, dass vektorielle Effekte vernachlässigbar sind, also $\nabla(\nabla \cdot \tilde{\mathbf{E}}) = 0$. Dies ist erfüllt, solange $\tilde{\mathbf{E}}$ senkrecht zum Wellenvektor $\mathbf{k}$ steht und der Puls nicht zu stark fokussiert wird [50]. Weiter sei das elektrische Feld linear polarisiert, $\tilde{\mathbf{E}} = \tilde{E} \mathbf{e}_\alpha$. Daraus ergibt sich mit $k = \frac{\omega}{c} n_o$ die skalare Wellengleichung

$$\partial_z^2 \tilde{E} + k^2(\omega) \tilde{E} = -\Delta_\perp \tilde{E} - \mu_0 \omega^2 \tilde{P}_{\text{NL}}, \quad (2.18)$$

wobei $\Delta_\perp = \partial_x^2 + \partial_y^2$ der transversale Anteil des Laplace-Operators ist. Die linke Seite lässt sich faktorisieren als $(\partial_z - ik)(\partial_z + ik) \tilde{E}$. Ignoriert man die rechte Seite von Gleichung (2.18), so ist die Lösung eine Superposition von vorwärts- und rückwärtspropagierender Welle,

$$\tilde{E}(z, \omega) = \tilde{\mathcal{A}}_+(\omega) e^{+ik(\omega)z} + \tilde{\mathcal{A}}_-(\omega) e^{-ik(\omega)z}. \quad (2.19)$$

Nehmen wir nun an, dass der vorwärtspropagierende Teil $\tilde{\mathcal{A}}_+$ dominiert. Mit der paraxialen Näherung $k_\perp \ll k$ gilt dann $\partial_z + ik(\omega) \approx 2ik(\omega)$ [27]. Dies ist die unidirektionale Approximation, welche eingesetzt in Gleichung (2.18) die *forward Maxwell equation* (FME) ergibt,

$$\partial_z \tilde{E} = ik \tilde{E} + i \frac{\Delta_\perp \tilde{E}}{2k} + i \frac{\mu_0 \omega^2}{2k} \tilde{P}_{\text{NL}}. \quad (2.20)$$

Eine nicht-paraxiale Gleichung erhält man analog, indem man eine Fourier-Transformation im Ortsraum durchführt und den transversalen Beugungsterm $\Delta_{\perp} \rightarrow -k_{\perp}^2$ in die Faktorisierung mit einbezieht. Dies führt zur *unidirectional pulse propagation equation* (UPPE) [51].

In der Literatur werden die Propagationsgleichungen statt im Laborsystem häufig im lokalen Pulssystem dargestellt. Dieses erhält man durch Einführung einer retardierten Zeit τ und der Transformation

$$\zeta = z, \quad \tau = t - \frac{z}{v_g}, \quad (2.21)$$

$$\partial_z = \partial_{\zeta} - \frac{1}{v_g} \partial_{\tau}, \quad \partial_t = \partial_{\tau}. \quad (2.22)$$

Ähnlich dem körperfesten Bezugssystem der Mechanik verfolgt das lokale Pulssystem den Puls in dem Zeitintervall mit der Geschwindigkeit v_g , welche üblicherweise der Gruppengeschwindigkeit entspricht. In numerischen Simulationen ist dies praktisch, da dadurch das in der Rechnung zu betrachtende Zeitgebiet möglichst klein gehalten werden kann. Das Analogon zu (2.22) in der Frequenzdomäne lautet $\partial_z = \partial_{\zeta} + i \frac{\omega}{v_g}$ und in der FME erscheint auf der rechten Seite ein zusätzlicher Term $-i \frac{\omega}{v_g} \tilde{E}$.

2.1.3 Phänomenologisches Filamentationsmodell

Die FME sowie die UPPE beschreiben die Propagation auf Ebene der Trägerwelle. Rechnerisch einfacher wird es, wenn man lediglich die Entwicklung der Einhüllenden $\mathcal{E}$ betrachtet. Solche *nonlinear envelope equations* (NEEs) erhält man, indem der Ansatz (2.7) in die Propagationsgleichungen oder direkt in die Wellengleichung eingesetzt und anschließend der schnell oszillierende Teil der Trägerwelle entfernt wird. So entsteht z. B. aus der FME die *forward envelope equation* (FEE),

$$\partial_z \tilde{\mathcal{E}} = i(k - k_0) \tilde{\mathcal{E}} + \frac{i}{2k} \Delta_{\perp} \tilde{\mathcal{E}} + i \frac{\mu_0 \omega^2}{2k} \tilde{\mathcal{P}}_{\text{NL}}. \quad (2.23)$$

Solch eine Näherung ist sinnvoll, wenn sich die Einhüllende nach Propagation über eine Wellenlänge nicht wesentlich ändert. Bleibt zusätzlich die räumliche Änderung der Phase klein, so können NEEs auch ultra-kurze Pulse mit nur wenigen optischen Zyklen erfolgreich beschreiben, z. B. mittels *generalized few-cycle envelope approximation* [52] oder der *slowly evolving wave approximation* [53].

Für ein phänomenologisches Modell der Femtosekunden-Filamentation separiert man die Strom- und Polarisationsdichte, $\tilde{\mathcal{P}}_{\text{NL}} \rightarrow \tilde{\mathcal{P}}_{\text{NL}} + \frac{i}{\omega} \tilde{\mathcal{J}}$, um die Effekte von gebundenen und freien Elektronen zu unterscheiden. In einem Kerr-Medium dominiert die Suszeptibilität dritter Ordnung, d. h. $\tilde{\mathcal{P}}_{\text{NL}} = \epsilon_0 \chi^{(3)} \tilde{\mathcal{E}}^3$. Betrachtet man in der nichtlinearen Polarisationsdichte nur die

Komponenten, welche mit der Fundamentalfrequenz oszillieren und dadurch zur Selbstfokussierung beitragen, dann erhält man

$$\tilde{\mathcal{P}}_{\text{NL}} = \epsilon_0 \chi^{(3)} \frac{3}{4} |\tilde{\mathcal{E}}|^2 \tilde{\mathcal{E}} = 2\epsilon_0 n_0 n_2 I \tilde{\mathcal{E}} \quad (2.24)$$

mit dem nichtlinearen Brechungsindexkoeffizienten n_2 . In Publikation 4.2 benutzen wir eine zeitlich gemittelte Propagationsgleichung für die Einhüllende, welche sich aus der FEE herleiten lässt. Die Zeitmittelung entspricht dabei anschaulich einer Substitution $\omega \rightarrow \omega_0$ und $k \rightarrow k_0$ im Frequenzbild. Ersetzt man $n_2 I$ mit dem nichtlinearen Brechungsindex $\Delta n(I)$, erhält man aus Gleichung (2.23) die paraxiale Wellengleichung

$$\partial_z \tilde{\mathcal{E}} = \frac{i}{2k_0} \Delta_{\perp} \tilde{\mathcal{E}} + i \frac{\omega_0}{c} \Delta n(I) \tilde{\mathcal{E}}. \quad (2.25)$$

Durch den nichtlinearen Faktor $\Delta n(I)$ nimmt sie die Form einer verallgemeinerten, nichtlinearen Schrödingergleichung an.

Die Stromdichte $\tilde{\mathcal{J}}$ setzt sich zusammen aus der Reaktion der freien Elektronen auf den Laserpuls und den Verlusten durch nichtlineare Absorption. Die Dynamik der freien Elektronen wird im Standardmodell durch das Drudemodell bestimmt, wobei wir Stöße zwischen den Elektronen in einem gasförmigen Medium auf der Zeitskala eines Femtosekunden-pulses vernachlässigen können. In einem einfachen Modell ohne Ionisationsverluste gilt dann für die Stromdichte $\tilde{\mathcal{J}} = i\epsilon_0 \omega \frac{\rho(I)}{2\rho_c}$. Hierbei ist $\rho_c \gg \rho$ die kritische Plasmadichte, bei der das Elektronenplasma für den Puls intransparent wird. Der nichtlineare Brechungsindex in (2.25) kann somit zusammengefasst werden zu

$$\Delta n(I) = n_2 I - \frac{\rho(I)}{2n_0 \rho_c}. \quad (2.26)$$

Dabei ist die Elektronendichte $\rho(I)$ ein zeitlich gemittelter Wert für einen Puls mit der Spitzenintensität I . Die zeitliche Entwicklung von $\rho(t)$ ist durch die Ratengleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho(t) = W(I)(\rho_A - \rho(t)) \quad (2.27)$$

mit der Gasdichte ρ_A des Mediums und einer Ionisierungsrate für Multiphotonenabsorption $W(I)$ gegeben. Letztere wird aus einer Verallgemeinerung der Keldysh-PPT-Theorie gewonnen [23]. Mathematisch betrachtet unterstützt Gleichung (2.25) die Entstehung von Filamenten, wenn sie stationäre Lösungen, sogenannte Solitonen, besitzt. Für einen reinen Kerr-Effekt, $\Delta n = n_2 I$, erhält man jedoch nur instabile Lösungen. Stabile Solitonen erfordern einen zusätzlichen, sättigenden Term im nichtlinearen Brechungsindex, wie er in (2.26) gegeben ist [54].

2.2 QUANTENMECHANISCHE BESCHREIBUNG DER LICHT-MATERIE-WECHSELWIRKUNG

Anstelle eines phänomenologischen Ansatzes soll die Polarisationsdichte nun quantenmechanisch beschrieben werden. Dazu betrachten wir die Wechselwirkung des Laserpulses mit einem einfachen Einelektronensystem. Die Kopplung erfolgt dabei über die elektromagnetischen Potentiale, welche jedoch nicht eindeutig definiert sind. Diese Eichfreiheit führt zu verschiedenen Darstellungen der zeitabhängigen Schrödingergleichung. Hat man diese gelöst, so kann die makroskopische Polarisationsdichte aus der Wellenfunktion berechnet werden. Eine detaillierte Behandlung von Atomen in starken Laserfeldern findet man in [55].

2.2.1 Kopplung der elektromagnetischen Potentiale an die Hamiltonfunktion

Um die Maxwell-Gleichungen zu entkoppeln, führt man in der Elektrodynamik das Vektorpotential $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ und das Skalarpotential $\phi(\mathbf{r}, t)$ ein, aus denen sich $\mathbf{E}$ und $\mathbf{B}$ definieren:

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad \text{und} \quad \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} - \nabla \phi. \quad (2.28)$$

Diese elektromagnetischen Potentiale sind nicht eindeutig festgelegt: Die Addition eines Gradientenfeldes $\nabla \zeta$ ergibt dasselbe $\mathbf{B}$, denn $\nabla \times (\nabla \zeta) = 0$, wobei $\zeta(\mathbf{r}, t)$ eine skalare, differenzierbare Funktion ist. Wird dem Skalarpotential die zeitliche Ableitung von ζ abgezogen, so bleibt $\mathbf{E}$ ebenfalls unverändert. Die physikalischen Größen sind somit eichinvariant, d. h. unabhängig von der Eichtransformation

$$\mathbf{A} \rightarrow \mathbf{A} + \nabla \zeta \quad \text{und} \quad \phi \rightarrow \phi - \frac{\partial \zeta}{\partial t}. \quad (2.29)$$

Betrachten wir nun ein Teilchen mit der Ladung q und Masse m . In der klassischen Hamiltonfunktion lautet ein eichinvarianter Ansatz für die Kopplung mit dem elektromagnetischen Feld

$$H(\mathbf{r}, \mathbf{p}, t) = \frac{1}{2m} (\mathbf{p} - q\mathbf{A}(\mathbf{r}, t))^2 + q\phi(\mathbf{r}, t), \quad (2.30)$$

sodass die Lorentzkraft in der Bewegungsgleichung

$$m \frac{\partial^2 \mathbf{r}}{\partial t^2} = q(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}) \quad (2.31)$$

reproduziert wird. Gleichung (2.30) beschreibt dabei die Wirkung des Lichtfeldes auf die Materie, indem der kanonische durch den kinetischen Impuls ersetzt und ein Potential addiert wird. Eine Rückwirkung auf das Lichtfeld wird jedoch vernachlässigt. Man nennt es deshalb auch minimale Kopplung. Nach dem Korrespondenzprinzip $\mathbf{p} \rightarrow -i\hbar \nabla$ erhält man den quantenmechanischen Hamiltonoperator $\hat{H}$. So gilt für ein freies Elektron ($q = -e$),

$$\hat{H} = \frac{1}{2m} (-i\hbar \nabla + e\mathbf{A}(\mathbf{r}, t))^2 - e\phi(\mathbf{r}, t). \quad (2.32)$$

*Im Folgenden
verwende ich wieder
reelle Größen für die
elektromagnetischen
Felder.*

*Ein quantenmechanischer
Operator ist
durch ein Dach $\wedge$
gekennzeichnet.*

Die Dynamik der Wellenfunktion $\psi(\mathbf{r}, t)$ wird über die zeitabhängige Schrödingergleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = \hat{H} \psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.33)$$

bestimmt. Mit dem Hamiltonoperator (2.32) ist diese Gleichung lokal eichinvariant, wenn die Wellenfunktion wie $\psi \rightarrow \psi e^{-i\zeta(\mathbf{r}, t)e/\hbar}$ mittransformiert wird. Die physikalische Realität, welche die Wellenfunktion beschreibt, ändert sich dabei nicht, denn das Betragsquadrat der Wellenfunktion sowie der Erwartungswert einer Observablen $\hat{X}$ bleiben erhalten [56]. Letzteres ist erfüllt, wenn $\hat{X}$ mit ζ vertauscht. Ist dies nicht der Fall, muss die Observable explizit transformiert werden zu

$$\hat{X} \rightarrow e^{-i\zeta(\mathbf{r}, t)e/\hbar} \hat{X} e^{i\zeta(\mathbf{r}, t)e/\hbar}. \quad (2.34)$$

So ist der kanonische Impuls $\hat{p} = -i\hbar \nabla$ in Anwesenheit eines elektromagnetischen Feldes keine Observable, der kinetische Impuls $\hat{p} - q\mathbf{A}$ mit transformiertem Vektorfeld hingegen schon.

2.2.2 Längen- und Geschwindigkeitseichung in der Schrödingergleichung

Durch die Eichfreiheit lässt sich erreichen, dass die Kopplung des Lichtfeldes ausschließlich über das Vektor- bzw. Skalarpotential erfolgt. So verlangt man in der Coulomb-Eichung $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ und aus (2.12) folgt

$$\Delta \phi(\mathbf{r}, t) = \frac{\rho(\mathbf{r}, t)}{\epsilon_0} \quad (2.35)$$

mit der Lösung

$$\phi(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int_{\mathbb{R}^3} \frac{\rho(\mathbf{r}', t)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}'. \quad (2.36)$$

Das Skalarpotential nimmt hier die Form des Coulomb-Potentials an. Ist das externe, propagierende Lichtfeld quellenfrei, also $\rho = 0$, dann verschwindet das Skalarpotential ϕ . Folglich gilt für das elektrische Feld

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t), \quad (2.37)$$

und der Hamiltonoperator (2.32) erhält die vereinfachte Form

$$\begin{aligned} \hat{H} &= \frac{1}{2m} (-i\hbar \nabla + e\mathbf{A})^2 \\ &= -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta - i\hbar \frac{e}{m} \mathbf{A} \cdot \nabla + \frac{e^2}{2m} \mathbf{A}^2, \end{aligned} \quad (2.38)$$

wobei die Relation $\nabla \cdot \mathbf{A} \psi = (\nabla \cdot \mathbf{A}) \psi + \mathbf{A} \cdot \nabla \psi$ angewendet wurde.

Betrachtet man ein im Atom gebundenes Elektron, so enthält der Hamiltonoperator ein zusätzliches, atomares Potential $V(\mathbf{r})$. Für das Wasserstoffatom ist $V(r) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r}$ mit $r = |\mathbf{r}|$. Kompliziertere Atome lassen sich in der

single active electron-Näherung modellieren. Dabei wird angenommen, dass nur das äußerste Elektron aktiv an der Wechselwirkung beteiligt ist und ein effektives, durch die restlichen Elektronen abgeschirmtes Coulomb-Potential erfährt. Die Wechselwirkung mit Argon ist z. B. in [57] so modelliert. Im Folgenden nehmen wir die Dipolnäherung an, d. h. , dass die elektromagnetischen Potentiale als ortsunabhängig betrachtet werden können, wenn die Ausdehnung eines einzelnen Atoms viel kleiner als die Wellenlänge des Lichts ist. Dann lässt sich der A^2 -Term in (2.38) durch die Eichtransformation

$$\zeta = -\frac{e}{2m} \int_{-\infty}^t A^2(t') dt' \quad (2.39)$$

eliminieren und man erhält die zeitabhängige Schrödingergleichung in Geschwindigkeitseichung,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta - i\hbar \frac{e}{m} \mathbf{A}(t) \cdot \nabla + V(r) \right) \psi(\mathbf{r}, t). \quad (2.40)$$

Ausgehend von dieser Gleichung verschwindet mit der Transformation $\zeta = -\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r}$ das Vektorpotential, und die Kopplung erfolgt allein über das Skalarpotential. Mit $\mathbf{A}(t) = 0$ und $\phi = \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{r}$ erhält man so die Schrödingergleichung in Längeneichung,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + V(r) + e\mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{r} \right) \psi(\mathbf{r}, t). \quad (2.41)$$

Die Längeneichung ist numerisch leichter zu implementieren, prägt der Wellenfunktion aber eine mit großem r stark oszillierende Phase $e^{-i\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r}}$ auf.

Die Bezeichnung Geschwindigkeitseichung kommt daher, dass im klassischen Bild das Vektorpotential an den Impuls koppelt und somit der Interaktionsterm proportional zur Geschwindigkeit $v = \frac{p}{m}$ ist.

2.3 EIGENZUSTÄNDE EINES ATOMS IM LASERFELD

Ist ein Atom einem Laserfeld ausgesetzt, so verschieben sich die atomaren Eigenenergien durch den dynamischen Stark-Effekt und die ungestörten atomaren Zustände sind keine Eigenzustände mehr. Eine Projektion auf Eigenzustände des ungestörten Hamiltonoperators, um z. B. Besetzungs- oder Ionisationswahrscheinlichkeiten auszurechnen, ist somit unzulässig. Selbst unter Verwendung einer instantanen Basis ist die Projektion auf gebundene Zustände abhängig von der Eichung und keine physikalisch messbare Größe. Während der Interaktion mit einem Laserpuls ist also kaum festzustellen, ob ein Elektron frei oder gebunden ist, geschweige denn, ob eine solche Definition überhaupt möglich ist [58]. In der Floquet-Theorie hingegen lässt sich die Wellenfunktion für ein zeitlich periodisches Problem in der Basis zeitunabhängiger Floquet-Moden darstellen und eine über eine Periode gemittelte Ionisierungsrate berechnen. Für optische Pulse ist die Floquet-Theorie anwendbar, solange sich die Pulseinhüllende und die instantane Frequenz nur langsam ändern [59].

2.3.1 Dynamische Stark-Verschiebung

Atome in einem externen, elektrostatischen Feld erfahren eine Änderung $\Delta\epsilon$ ihrer Energieniveaus, welche quadratisch mit der Feldstärke skaliert. Solche Feldstärken sind typischerweise klein gegenüber den atomaren Feldern und die quadratische Abhängigkeit kann mit einer quantenmechanischen Störungsrechnung in zweiter Ordnung nachgewiesen werden. Wir nehmen an, dass das statische, elektrische Feld entlang der x -Achse ausgerichtet ist. Unter Verwendung der Polarisierbarkeit α_n eines Eigenzustandes, welche die Verschiebungspolarisation $p_n = \alpha_n E_x$ durch ein externes Feld beschreibt, gilt für die Energieänderung durch den quadratischen Stark-Effekt [56]

$$\Delta\epsilon_n^{(2)} = -\frac{\alpha_n}{2} E_x^2 \quad \text{mit} \quad \alpha_n = 2e^2 \sum_{m \neq n} \frac{|\langle n | x | m \rangle|^2}{\epsilon_n - \epsilon_m}. \quad (2.42)$$

Der Korrekturterm erster Ordnung $\Delta\epsilon^{(1)}$ ist proportional zum Dipolmoment $\langle n | x | n \rangle$, welches für nicht-entartete Zustände verschwindet. Andernfalls beobachtet man eine lineare Aufspaltung der Energieniveaus, wie z. B. für l -entartete Zustände im Wasserstoffatom. Interagiert ein Atom mit einem Wechselfeld, etwa einer linear polarisierten, elektromagnetischen Welle mit der Amplitude E_x , dann erwarten wir wieder eine Niveaushift proportional zu E_x^2 , denn der quadratische Stark-Effekt ist unabhängig vom Vorzeichen. Die störungstheoretische Beschreibung ist ähnlich wie im elektrostatischen Fall, jedoch mit einer frequenzabhängigen Polarisierbarkeit $\alpha_n(\omega)$, welche im Grenzfall $\omega \rightarrow 0$ in die statische Polarisierbarkeit α_n übergeht [60]. Dabei entspricht das zeitliche Mittel $\overline{E^2(t)}$ der Hälfte des Amplitudenquadrats, und wir erhalten für den dynamischen Stark-Effekt (*ac Stark shift*) die Beziehung

$$\Delta\epsilon_n^{(\text{ac})} = -\frac{\alpha_n(\omega)}{4} E_x^2. \quad (2.43)$$

Für starke, elektrische Felder, wie sie von Lasern erzeugt werden können, gilt die Störungsrechnung im Prinzip nicht mehr und die Verschiebung der Eigenenergien muss mit anderen Methoden, z. B. der Floquet-Theorie, beschrieben werden. Folgende Überlegung zeigt, dass die störungstheoretische Energieänderung für Rydbergzustände dennoch eine gute Näherung darstellt. Freie Elektronen oszillieren im Wechselfeld mit der Geschwindigkeit $v_{\text{osc}} = \frac{me}{\omega} E_x \cos(\omega t)$ und erhalten dadurch die kinetischen Energie

$$U_p = \frac{1}{2} m \overline{v_{\text{osc}}^2} = \frac{e^2 E_x^2}{4m\omega^2}. \quad (2.44)$$

U_p wird auch als ponderomotorisches Potential bezeichnet. Andererseits können wir im Grenzfall schwach gebundener Elektronen für die Polarisierbarkeit $\alpha_n(\omega) = -\frac{me^2}{\omega^2}$ in (2.43) einsetzen [61]. Die resultierende, dynamische Stark-Verschiebung für Rydbergzustände entspricht dann genau dem ponderomotorischen Potential, $\Delta\epsilon_{\text{Rydberg}}^{(\text{ac})} = U_p$. Da der Stark-Effekt des Grundzustandes klein gegenüber U_p ist, verschiebt sich auch die Ionisierungsenergie

I_p in Anwesenheit eines Wechselfeldes mit Intensität $I \sim E_x^2$ um das ponderomotorische Potential [55].

Es ist zu bemerken, dass die berechnete Niveauverschiebung durch den Stark-Effekt $\Delta\epsilon$ abhängig von der Wahl der Eichung ist. Da aber im Experiment nicht absolute Energien, sondern nur Energiedifferenzen gemessen werden, ist der beobachtbare Effekt eichinvariant [60]. Zum Beispiel bleibt die Energie von Rydbergzuständen in Geschwindigkeitseichung konstant, während sich die des Grundzustandes mit dem negativen, ponderomotorischen Potential verringert. Dies folgt daraus, dass der Term $\frac{e^2}{m}A^2(t)$ vernachlässigt wird, welcher mit $\overline{A^2(t)} \approx \frac{1}{2\omega^2}E_x^2$ zur Absenkung der Energie um U_p führt.

2.3.2 Floquet-Theorem

Angenommen, eine monochromatische Welle wechselwirkt mit einem atomaren System gegeben durch den Hamiltonoperator $\hat{H}_0$. Dann kann die Interaktion als Störung $\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + \hat{H}_1(t)$ mit der zeitlichen Periode $T = \frac{2\pi}{\omega_0}$ aufgefasst werden. Nach dem Floquet-Theorem hat die zeitabhängige Schrödingergleichung in solch einem Fall Lösungen der Form

$$\psi(\mathbf{r}, t) = e^{-i\epsilon t/\hbar} \phi(\mathbf{r}, t), \quad (2.45)$$

wobei $\phi(t + T) = \phi(t)$ ebenfalls periodisch ist. Die Quasienergie ϵ und die sogenannten Floquet-Zustände ϕ erfüllen die Eigenwertgleichung

$$\left(\hat{H} - i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \right) \phi(\mathbf{r}, t) = \epsilon \phi(\mathbf{r}, t). \quad (2.46)$$

Dabei ist ϕ nicht eindeutig definiert, denn die Multiplikation mit einer Phase $e^{-im\omega_0 t}$ ändert nicht die Periodizität, wenn m ganzzahlig ist. Folglich sind $\phi' = e^{-im\omega_0 t} \phi$ und $\epsilon' = \epsilon + m\hbar\omega_0$ auch Lösungen von (2.46). Die Periodizität von ϕ erlaubt die Entwicklung der Wellenfunktion in die Fourier-Komponenten der Floquet-Zustände, um eine zeitunabhängige Form der Eigenwertgleichung zu finden,

$$\psi(\mathbf{r}, t) = e^{i\epsilon t/\hbar} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \varphi_m(\mathbf{r}) e^{im\omega_0 t}. \quad (2.47)$$

Die Exponentialfunktionen $\{e^{im\omega_0 t}\}$ bilden dabei eine orthogonale Familie im Intervall $[0, T]$ mit dem Skalarprodukt $\frac{1}{T} \int_0^T e^{i(m-n)\omega_0 t} dt = \delta_{m,n}$. Einsetzen von (2.47) in die Schrödingergleichung (2.33) ergibt unter Ausnutzung dieser Orthogonalitätsrelation ein System gekoppelter Differentialgleichungen für die zeitunabhängigen Floquet-Moden φ_n ,

$$(\hat{H}_0 + n\hbar\omega_0)\varphi_n(\mathbf{r}) + \sum_m \hat{H}_1^{(m-n)} \varphi_m(\mathbf{r}) = \epsilon \varphi_n(\mathbf{r}) \quad (2.48)$$

$$\text{mit } \hat{H}_1^{(m-n)} = \frac{1}{T} \int_0^T \hat{H}_1(t) e^{i(m-n)\omega_0 t} dt. \quad (2.49)$$

Mit Einschalten eines externen Feldes wird ein gebundener Zustand des Systems in unendliche viele Floquet-Moden φ_n mit periodischen Quasienergien $\epsilon + n\hbar\omega_0$ überführt, welche denselben physikalischen Zustand beschreiben [55]. Hierbei bezeichnet man n auch als Blockindex und die Kopplung zwischen den Floquet-Blöcken wird als Absorption oder Emission von Photonen aufgefasst. In Vektorschreibweise entspricht dies der zeitunabhängigen Eigenwertgleichung

$$\hat{H}_F \varphi = \epsilon \varphi. \quad (2.50)$$

Diese sogenannte Floquet-Gleichung kann durch die Darstellung von $\hat{H}_F$ in der Basis Sturm'scher Funktionen gelöst werden, welche für Eielektronensysteme präzise Ergebnisse liefert und numerisch stabil ist [62]. Eine andere Methode, um Floquet-Zustände im räumlich eindimensionalen Fall zu bestimmen, ist die Diagonalisierung des Zeitentwicklungsoperators $\hat{U}(T) = \hat{U}(t+T, t)$ [63]. Aus (2.45) folgt die Eigenwertgleichung

$$\hat{U}(T) \psi(\mathbf{r}, t) = e^{-i\epsilon T} \psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.51)$$

mit den Floquet-Multiplikatoren $e^{-i\epsilon T}$. Die Matrixelemente von $\hat{U}(T)$ in einer geeigneten Basis $\{\Lambda_n\}$ erhält man durch Propagation der Basisvektoren um eine Periode T ,

$$U^{n,m} = \langle \Lambda_n, \hat{U}(T) \Lambda_m \rangle = \int \Lambda_n(x, 0) \Lambda_m(x, T) dx \quad (2.52)$$

mit dem Skalarprodukt $\langle \cdot, \cdot \rangle$. Für endliche Pulsdauern lässt sich alternativ die Besetzung von Floquet-Zuständen aus der numerisch berechneten Wellenfunktion $\psi(x, t)$ bestimmen [64]. Stellt man $\psi(x, t)$ als Superposition von Floquet-Zuständen verschiedenen Quasienergien ϵ_j dar, dann erhält man nach räumlicher Integration die Funktion

$$Q(t) = \sum_{j,n} e^{\frac{i}{\hbar} t(\epsilon_j + n\hbar\omega_0)} \int \varphi_{j,n}(x) dx. \quad (2.53)$$

In der Fourier-Transformation von $Q(t)$ kann man anschließend die Quasienergien $\epsilon_j + n\hbar\omega_0$ ablesen.

2.3.3 Ionisierende Randbedingungen

Bei hinreichend hohen Intensitäten tritt durch Multiphotonenabsorption eine Kopplung zwischen gebundenen Zuständen und dem Kontinuum auf. Eigenzustände können dadurch ionisieren und werden metastabil mit einer endlichen Lebensdauer. Wird ein Elektron unter Einfluss eines Laserfeldes am Atompotential gestreut, kann es durch Emission von Photonen in einen gebundenen Zustand eingefangen werden. Gleichzeitig ist es ihm jederzeit möglich, durch Absorption von Photonen dem Potential zu entkommen. Solch ein metastabiler Zustand macht sich in der Streuamplitude als

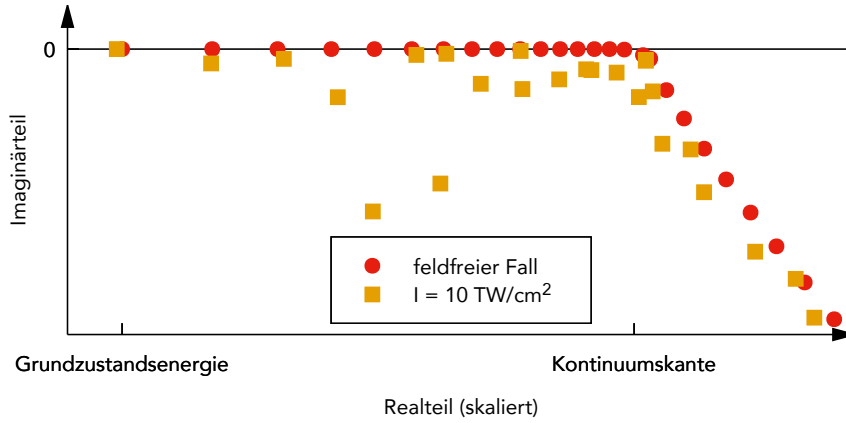


Abbildung 2: Komplexe Quasienergien ϵ des eindimensionalen Wasserstoffatoms im feldfreien Fall (Kreise) sowie unter Einfluss eines starken Laserfeldes (Quadrate), welche wir aus den Eigenwerten des Propagators $U(T)$ in [C] berechneten. Durch die komplexe Skalierung werden die Energien der Kontinuumszustände um den Winkel 2θ in die untere, komplexe Ebene gedreht, während die Energien der gebundenen Zustände auf der reellen Achse verbleiben. Mit Einschalten eines Feldes besitzen nun auch die Zustände unterhalb der Kontinuumschance einen nicht-verschwindenden Imaginärteil in der Energie, d. h. eine endliche Zerfallszeit: Sie werden zu metastabilen Zuständen. Zur besseren Darstellung sind die Realteile unterhalb der Kontinuumschance logarithmisch aufgetragen.

Ausschlag mit der Breite Γ bemerkbar, daher beschreibt man solche Zustände in der Streutheorie als Resonanzen. Die Wellenfunktion von metastabilen Zuständen nähert sich für große r einer Superposition von Kugelwellen an, welche ausgehende, freie Elektronen beschreiben. Diese sogenannte Siegert-Randbedingung führt dazu, dass die Wellenfunktion exponentiell anwächst und nicht normierbar ist. Man kann ψ jedoch in eine quadratintegrierbare Funktion transformieren, indem die Ortskoordinate komplex skaliert wird mit $r \rightarrow r \exp(i\theta)$. Dadurch verlassen wir jedoch die uns gewohnte Hermitesche Quantenmechanik. Für eine umfassende Übersicht über die Quantentheorie der Resonanzen und die komplexe Skalierung sei auf den Report von Moiseyev [65] verwiesen. Die korrespondierenden Quasienergien ϵ zum nicht-Hermiteschen Floquet-Hamiltonoperator $\hat{H}_F(\theta)$ sind komplex (siehe Abbildung 2) mit

$$\epsilon = \varepsilon - i\frac{\Gamma}{2}. \quad (2.54)$$

Hierbei ist ε die um den dynamischen Starkeffekt $\Delta\epsilon^{(ac)}$ verschobene Energie eines feldfreien, gebundenen Zustandes und Γ ist die Ionisierungsrate, die der inversen Lebensdauer eines metastabilen Zustandes entspricht.

2.4 ELEKTRONENDYNAMIK IN DIELEKTRISCHEN FESTKÖRPERN

Zur Simulation der Polarisationsverzögerung in Festkörpern nehmen wir ein einfaches Modell ohne Elektron-Elektron- oder Elektron-Phonon-Wechselwirkung an, welche auf der Zeitskala von Femtosekunden vernachlässigbar sind [66].

2.4.1 Direktes und reziprokes Gitter

Im kristallinen Festkörper bilden die Atome ein regelmäßiges Gitter $\mathcal{R}$, welches durch Translation der Basisvektoren $\mathbf{a}_i$ aufgespannt wird. Der Ort eines Atoms ist dann durch einen Gittervektor

$$\mathbf{R} = n_1 \mathbf{a}_1 + n_2 \mathbf{a}_2 + n_3 \mathbf{a}_3, \quad n_i \in \mathbb{Z} \quad (2.55)$$

gegeben. Analog lässt sich ein reziproker Gittervektor $\mathbf{K}$ definieren, welcher $e^{i\mathbf{K}\mathbf{R}} = 1$ erfüllt. Für ihn gilt

$$\mathbf{K} = m_1 \mathbf{b}_1 + m_2 \mathbf{b}_2 + m_3 \mathbf{b}_3, \quad m_i \in \mathbb{Z} \quad (2.56)$$

mit den Basisvektoren des reziproken Gitters $\mathcal{K}$,

$$\mathbf{b}_i = 2\pi \frac{\mathbf{a}_j \times \mathbf{a}_k}{\Omega}. \quad (2.57)$$

Hier sind i, j, k zyklische Indizes und $\Omega = \mathbf{a}_1 \cdot (\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3)$ ist das Volumen der Elementarzelle. Es folgt die Beziehung $\mathbf{a}_i \mathbf{b}_j = 2\pi \delta_{ij}$ sowie $\mathbf{K}\mathbf{R} = 2\pi \sum_i m_i n_i$. Eine gitterperiodische Funktion $f(\mathbf{r} + \mathbf{R}) = f(\mathbf{r})$ lässt sich dann als Fourier-Reihe über ebene Wellen mit Wellenvektor $\mathbf{K}_j$ schreiben,

$$f(\mathbf{r}) = \sum_j f_{\mathbf{K}_j} e^{i\mathbf{K}_j \mathbf{r}} \quad \text{mit} \quad f_{\mathbf{K}_j} = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} f(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{K}_j \mathbf{r}} d^3r. \quad (2.58)$$

2.4.2 Bloch-Theorem

Das Bloch-Theorem ist das Analogon zum Floquet-Theorem mit einem räumlich periodischen Potential.

In der Born-Oppenheimer-Näherung der Festkörperphysik bewegt sich ein Elektron frei im räumlich periodischen Potential $V(\mathbf{r} + \mathbf{R}) = V(\mathbf{r})$ der Atomrümpfe. Da die Masse der Atomkerne viel größer ist als die Masse der Elektronen, betrachtet wir nur die Dynamik der Elektronen und nehmen an, dass die Atomkerne fest auf dem Gitter sitzen. Nach dem Bloch-Theorem besitzt die stationäre Schrödingergleichung

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + V(\mathbf{r}) \right) \phi(\mathbf{r}) = \varepsilon \phi(\mathbf{r}) \quad (2.59)$$

für einen Wellenvektor $\mathbf{k}$ die Lösungen

$$\begin{aligned} \phi_k^n(\mathbf{r}) &= e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} u_k^n(\mathbf{r}) \quad \text{mit} \quad u_k^n(\mathbf{r} + \mathbf{R}) = u_k^n(\mathbf{r}) \\ \text{und} \quad \phi_k^n(\mathbf{r} + \mathbf{R}) &= e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}} \phi_k^n(\mathbf{r}). \end{aligned} \quad (2.60)$$

Hierbei ist n der Bandindex der sogenannten Bloch-Funktion ϕ_k^n mit Energie ε_k^n . Die periodische Funktion u_k^n kann nach (2.58) entwickelt werden, und man erhält

$$\phi_k^n(\mathbf{r}) = \sum_j \alpha_{k,j}^n e^{i(\mathbf{k}+\mathbf{K}_j)\mathbf{r}}, \quad (2.61)$$

wobei die Summe über alle Vektoren $\mathbf{K}$ des reziproken Gitters läuft. Unter der Bedingung, dass die Bloch-Funktionen auf dem Gebiet Ω orthonormal sind, gilt für die Entwicklungskoeffizienten

$$\frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} (\phi_k^n(\mathbf{r}))^* \phi_{k'}^m(\mathbf{r}) d^3r \equiv \delta_{m,n} \delta_{k,k'} \Leftrightarrow \sum_j |\alpha_{k,j}^n|^2 = 1. \quad (2.62)$$

Der Wellenvektor $\mathbf{k}$ ist nicht eindeutig definiert, denn die Substitution $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k} + \mathbf{K}$ in (2.61) liefert dieselbe Reihenentwicklung. Man beschränkt $\mathbf{k}$ daher auf die erste Brillouin-Zone um den reziproken Gittervektor $\mathbf{K}_0$, sodass $|\mathbf{k} - \mathbf{K}_j| > |\mathbf{k} - \mathbf{K}_0| \forall j \neq 0$ gilt. Durch Einsetzen von (2.61) in die Schrödingergleichung (2.59) erhält man das gekoppelte Gleichungssystem

$$\frac{\hbar^2}{2m} (\mathbf{k} + \mathbf{K}_l)^2 \alpha_{k,l}^n + \sum_j V^{(j-l)} \alpha_{k,j}^n = \varepsilon_k^n \alpha_{k,l}^n \quad (2.63)$$

$$\text{mit } V^{(j-l)} = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} V(\mathbf{r}) e^{i(\mathbf{K}_j - \mathbf{K}_l)\mathbf{r}} d^3r. \quad (2.64)$$

Hier wurde ausgenutzt, dass die ebenen Wellen $e^{i\mathbf{K}_j\mathbf{r}}$ auf dem Gebiet Ω orthonormal zueinander sind. Gleichung (2.63) stellt den ungestörten Hamiltonoperator $\hat{H}_0$ in der Basis der ebenen Wellen dar. Um eine endliche Matrix zu erhalten, welche man diagonalisieren kann, wird in der Praxis die Anzahl der zu berücksichtigenden reziproken Gittervektoren beschränkt.

2.4.3 Zeitabhängige Dynamik

Die Interaktion mit einem Laserpuls fügt dem Hamiltonoperator einen zeitabhängigen Kopplungsterm hinzu, $\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + \hat{H}_1(t)$. Die Dynamik der Elektronen im Kristallgitter wird durch die zeitabhängige Schrödingergleichung bestimmt, welche in Geschwindigkeitseichung die Form

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta - i\hbar \frac{e}{m} \mathbf{A}(t) \nabla + V(\mathbf{r}) \right) \psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.65)$$

annimmt. Für kurze Pulse von wenigen Femtosekunden haben sich Eielektronenmodelle bewährt, bei denen makroskopische Observablen aus den Eigenschaften einzelner, unabhängiger Elektronen gewonnen werden [67]. Die Lösungen ϕ_k^n der stationären Schrödingergleichung (2.59) dienen dabei als Basis einer zeitabhängigen Eielektronenwellenfunktion

$$\psi_k(\mathbf{r}, t) = \sum_n \beta_k^n(t) \phi_k^n(\mathbf{r}) \quad \text{mit} \quad \beta_k^n = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} (\phi_k^n(\mathbf{r}))^* \psi_k(\mathbf{r}, t) d^3r. \quad (2.66)$$

Diese setzen wir in (2.65) ein und nutzen die Normierungsbedingung (2.62) sowie die Orthogonalität der ebenen Wellen aus. Nach Multiplikation mit $(\phi_{k'}^m)^*$ und Integration über Ω erhält man mit $\hat{H}_0 \phi_k^n = \varepsilon_k^n \phi_k^n$ die gekoppelten Differentialgleichungen für die Entwicklungskoeffizienten β_k^n ,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \beta_k^n(t) = \varepsilon_k^n \beta_k^n(t) + \frac{e}{m} \sum_n \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{p}_k^{mn} \beta_k^n(t). \quad (2.67)$$

Dabei sind $\mathbf{p}_k^{mn}$ die Matrixelemente des Impulsoperators,

$$\mathbf{p}_k^{mn} = -\frac{i\hbar}{\Omega} \int_{\Omega} (\phi_k^m(\mathbf{r}))^* \nabla \phi_k^n(\mathbf{r}) d^3r = \hbar \sum_j \left(\alpha_{k,j}^m \right)^* \alpha_{k,j}^n (\mathbf{k} + \mathbf{K}_j). \quad (2.68)$$

Vorteil der Geschwindigkeitseichung ist es, dass es nur eine Kopplung zwischen den Bändern gibt aber nicht zwischen verschiedenen Werten von $\mathbf{k}$. Das wurde in Gleichung (2.66) vorweggenommen, in der – genau genommen – ein Integral über die erste Brillouin-Zone fehlt. In der weiteren Rechnung würde sich aber ein zusätzlicher Faktor $\int \exp(i(\mathbf{k} - \mathbf{k}')\mathbf{r}) d\mathbf{r} / \Omega = \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$ ergeben, welcher direkt ausintegriert werden kann. In der Längeneichung mit $\hat{H}_1(t) = e\mathbf{E}(t)\mathbf{r}$ muss die Kopplung zwischen verschiedenen Wellenvektoren jedoch berücksichtigt werden, da das Integral

$$\frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} (\phi_{k'}^m(\mathbf{r}))^* \mathbf{r} \phi_k^n(\mathbf{r}) d^3r \quad (2.69)$$

für $\mathbf{k}' \neq \mathbf{k}$ nicht verschwindet [68, 69].

2.4.4 Strom- und Polarisationsdichte

Aus der Wellenfunktion ψ_k eines Elektrons sollen nun die makroskopischen Messgrößen Polarisations- und Stromdichte hergeleitet werden. Schauen wir uns zunächst die Wahrscheinlichkeitsdichte $\rho_k = \int |\psi_k|^2 d^3r$ innerhalb einer Elementarzelle an. Die Kontinuitätsgleichung besagt, dass deren zeitliche Änderung durch die Divergenz der Wahrscheinlichkeitsstromdichte $\mathbf{j}_k$ ausgeglichen wird. Mit der Zeitableitung $\partial_t \psi_k$ aus der Schrödingergleichung (2.65) erhält man

$$\begin{aligned} \nabla \mathbf{j}_k &= -\frac{\partial}{\partial t} \rho_k = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} \left(\psi_k^*(\mathbf{r}, t) \frac{\partial}{\partial t} \psi_k(\mathbf{r}, t) + \psi_k(\mathbf{r}, t) \frac{\partial}{\partial t} \psi_k^*(\mathbf{r}, t) \right) d^3r \\ &= -\frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} \frac{i\hbar}{2m} \nabla (\psi_k^*(\mathbf{r}, t) \nabla \psi_k(\mathbf{r}, t) - \psi_k(\mathbf{r}, t) \nabla \psi_k^*(\mathbf{r}, t)) d^3r \\ &\quad - \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} \frac{e}{m} \mathbf{A}(t) (\nabla |\psi_k(\mathbf{r}, t)|^2) d^3r. \end{aligned} \quad (2.70)$$

Lässt man auf beiden Seiten die Divergenz weg, gelangt man zu einem Ausdruck für die Wahrscheinlichkeitsstromdichte,

$$\mathbf{j}_k = \frac{1}{m} \text{Re} \left\{ \sum_{m,n} (\beta_k^m(t))^* \beta_k^n(t) \mathbf{p}_k^{m,n} \right\} + \frac{e}{m} \mathbf{A}(t), \quad (2.71)$$

wobei die Entwicklung in Bloch-Funktionen (2.66) für $\psi_k(\mathbf{r}, t)$ und die Matrixdarstellung des Impulsoperators (2.68) ausgenutzt wurde. Als Anfangsbedingung seien die Leitungsbande ($\varepsilon_k^n > 0$) leer und die Valenzbande voll besetzt. Für die Wellenfunktion eines einzelnen Elektrons, welches sich vor dem Puls im l -ten Valenzband befindet, gilt somit $\psi_k^l(\mathbf{r}, t_{\min}) = \phi_k^l(\mathbf{r})$. Die entsprechenden Wahrscheinlichkeitsstromdichten $\mathbf{j}_k^l(t)$ werden über die erste Brillouin-Zone integriert und zur makroskopischen Stromdichte summiert,

$$\mathbf{J}(t) = -e \sum_l \int \mathbf{j}_k^l(t) d^3k. \quad (2.72)$$

Aus deren zeitlichen Ableitung erhält man die Polarisationsdichte

$$\mathbf{P}(t) = \int_{-\infty}^t \mathbf{J}(\tau) d\tau. \quad (2.73)$$

Möchte man die zur gesamten Stromdichte beitragenden Übergänge separieren, müssen die einzelnen Summanden in der Wahrscheinlichkeitsstromdichte $\mathbf{j}_k$ aus (2.71) zu jedem Zeitpunkt t in der instantanen Basis $\{\phi_k\}$ berechnet werden. Deren Basisvektoren sind Lösungen der stationären Schrödingergleichung (2.59) zuzüglich dem Kopplungsterm $\hat{H}_1(t) \phi_k(\mathbf{r})$. Die analog zu (2.66) instantanen, zeitabhängigen Entwicklungskoeffizienten $\beta_k^n(t)$ erhält man aus der Projektion der Basisvektoren auf die Wellenfunktion $\psi_k(\mathbf{r}, t)$,

$$\beta_k^n(t) = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} (\phi_k^n)^* \underbrace{\sum_m \beta_k^m(t) \phi_k^m d^3r}_{\psi_k(\mathbf{r}, t)} = \sum_{m,j} \beta_k^m(t) (\alpha_{k,j}^n)^* \alpha_{k,j}^n, \quad (2.74)$$

wobei $\alpha_{k,j}^n$ die Entwicklungskoeffizienten von $\phi_k^n(\mathbf{r})$ darstellen. Die Intra- und Interbandbeiträge zum Zeitpunkt t sind dann gegeben durch

$$\mathbf{j}_k^{n,m} = \frac{1}{m_e} \text{Re} \left\{ (\beta_k^m(t))^* \beta_k^n(t) \left(\pi_k^{m,n} + \delta_{m,n} \frac{e}{m_e} \mathbf{A}(t) \right) \right\} \quad (2.75)$$

$$\text{mit } \pi_k^{mn} = \hbar \sum_j (\alpha_{k,j}^m)^* \alpha_{k,j}^n (\mathbf{k} + \mathbf{K}_j), \quad (2.76)$$

sodass die Summe über $\{m, n\}$ die Wahrscheinlichkeitsstromdichte in (2.71) ergibt.

Zur Vereinfachung der Rechnung kann man – falls der Laserpuls linear polarisiert ist – zu einem eindimensionalen Modell übergehen. Die obigen Gleichungen ändern sich dabei bis auf (2.72) nicht. In der Stromdichte

$$J(t) = -\eta e \sum_l \int j_k^l(t) dk \quad (2.77)$$

kommt ein phänomenologischer Faktor η hinzu, welcher die Integration über die fehlenden zwei Raumdimensionen kompensieren soll. Dieser wird anhand bekannter optischer Eigenschaften des Mediums ermittelt [67].

NUMERISCHE METHODEN

We have seen that computer programming is an art,
because it applies accumulated knowledge to the world,
because it requires skill and ingenuity, and especially
because it produces objects of beauty.

Donald E. Knuth

Einige für diese Dissertation relevante, numerische Probleme können mit Standardroutinen in MATLAB gelöst werden, wie z. B. die stationäre Schrödingergleichung als Eigenwertproblem und die gekoppelten, gewöhnlichen Differentialgleichung in Kapitel 2.4. Darauf soll hier nicht näher eingegangen werden und der interessierte Leser sei auf die umfassende Abhandlung numerischer Verfahren in den *Numerical recipes* [70] verwiesen. In diesem Kapitel wird hauptsächlich die Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung beschrieben, da diese numerisch aufwendiger und von MATLAB in überschaubarer Zeit nicht zu bewältigen ist. Die Implementierung der vorgestellten Methoden fand in der für wissenschaftliche Zwecke geeigneten Programmiersprache FORTRAN 95 statt und nahm einen wesentlichen Teil der Promotionszeit in Anspruch. Eine detaillierte, numerische Behandlung der Schrödingergleichung für Atome ist im Kapitel *Numerical intergration of the wave equations* in [55] zu finden. Es gibt unzählige weitere Bücher über numerische Mathematik und wissenschaftliches Programmieren, doch die Qualität der Programmierung wird in den wenigsten thematisiert. Dabei fehlt einem als Nicht-Informatiker oft das Wissen über gängige Programmierstile und Konventionen. So entsteht undokumentierter, schwer lesbarer Quelltext, welcher verständlicherweise nicht gern weitergegeben wird. Im Sinne von *Open Science* sollte der Entwicklung wissenschaftlicher Software mehr Beachtung geschenkt werden. Wie man qualitativ hochwertigen Quelltext schreibt, wird z. B. in den *Best practices for scientific computing* [71] und in dem eher allgemeinen Ratgeber *Weniger schlecht programmieren* [72] erläutert.

3.1 LÖSUNG DER EINDIMENSIONALEN SCHRÖDINGERGLEICHUNG

Die eindimensionale Betrachtung des Wasserstoffatoms erlaubt es, eine Reihe von Simulationen in einem großen Parameterraum in überschaubarer Rechenzeit durchzuführen. Im Folgenden wird daher die Lösung der eindimensionalen, zeitabhängigen Schrödingergleichung durch eine unitäre Näherung des Zeitentwicklungsoperators skizziert, welche nach Diskretisierung dem Crank-Nicolson-Schema entspricht. Dieses Schema kann auch auf den linearen Teil der nichtlinearen Schrödingergleichung angewendet werden, erfordert jedoch die Separierung der Operatoren mittels *split-step*-Verfahren.

3.1.1 Cayley-Form des Propagationsoperators

Die Singularität des Coulomb-Potentials $V(x) \sim \frac{1}{x}$ am Ursprung führt im eindimensionalen Wasserstoffatom zu numerischen Problemen und kann durch ein einseitiges Potential ($x > 0$) mit reflektiven Randbedingungen bei $x = 0$ ersetzt werden. Alternativ verwende ich hier ein *soft-core*-Potential $\frac{1}{x^2 + \alpha^2}$, welches die Singularität umgeht und eine realistischere Modellierung des Wasserstoffatoms zulässt [73]. Der Parameter $\alpha = \sqrt{2}$ wird dabei so gewählt, dass die Ionisierungsenergie $I_p = 13,6$ eV mit der des dreidimensionalen Falls übereinstimmt. Die zeitabhängige Schrödingergleichung nimmt die folgende Form an,

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, t) = \left(-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{\sqrt{x^2 + \alpha^2}} + \hat{H}_1(t) \right) \psi(x, t) \quad (3.1)$$

$$\text{mit } \hat{H}_1(t) = \begin{cases} xE(t) & \text{Längeneichung} \\ -iA(t) \frac{\partial}{\partial x} & \text{Geschwindigkeitseichung} \end{cases} \quad (3.2)$$

Der Bohrsche
Atomradius a_0 , die
Elektronenmasse m ,
die Elementarladung
 e sowie die
Hartree-Energie
 $\epsilon_h = \frac{\hbar^2}{ma_0^2}$
entsprechen jeweils
genau einer
atomaren Einheit.

wobei wir hier und im Folgenden atomare Einheiten (au) benutzen. Diese Gleichung lässt sich formal analytisch lösen. Setzt man für die Entwicklung der Wellenfunktion $\psi(x, t) = \hat{U}(t, t_0) \psi(x, t_0)$ in (3.1) ein, erhält man eine gewöhnliche Differentialgleichung für den Zeitentwicklungsoperator $\hat{U}$, welche die Lösung in Form einer Dyson-Reihe

$$\hat{U}(t, t_0) = \hat{\mathcal{T}} \exp \left(-i \int_{t_0}^t \hat{H}(t') dt' \right) \quad (3.3)$$

mit dem Zeitordnungsoperator $\hat{\mathcal{T}}$ besitzt. Dieser ist notwendig, wenn $H(t)$ zu verschiedenen Zeiten nicht mit sich selbst kommutiert. Zerlegt man $\hat{U}(t, t_0)$ in viele kleine Propagationsschritte $\Delta t = \tau$, $t_n = t_0 + n\tau$, so gilt in erster Ordnung der Magnus-Entwicklung [74] von $\hat{\mathcal{T}}$,

$$\hat{U}(t, t_0) = \prod_n \hat{U}(t_{n+1}, t_n) \approx \prod_n \exp \left(-i \int_{t_n}^{t_{n+1}} \hat{H}(t') dt' \right). \quad (3.4)$$

Für hinreichend kleine Schrittweiten kann der Hamiltonoperator im Intervall $[t_n, t_{n+1}]$ linear interpoliert werden, und wir ersetzen das Integral durch $\tau \hat{H}(t_{n+\frac{1}{2}})$. Für den Propagator $\hat{U}(t_{n+1}, t_n)$, welcher mit $\hat{U}(t_{n+1}, t_n) \psi^n = \psi^{n+1}$ die Änderung der Wellenfunktion über einen Zeitschritt beschreibt, gilt demnach

$$\begin{aligned} \hat{U}(t_{n+1}, t_n) &\approx \exp\left(-i\tau \hat{H}(t_{n+\frac{1}{2}})\right) \\ &\approx \left(1 + i\frac{\tau}{2} \hat{H}(t_{n+\frac{1}{2}})\right)^{-1} \left(1 - i\frac{\tau}{2} \hat{H}(t_{n+\frac{1}{2}})\right) + O(\tau^2). \end{aligned} \quad (3.5)$$

Die letzte Näherung ist eine unitäre Entwicklung des Exponentialoperators in zweiter Ordnung, auch bekannt als Cayley-Form.

Die numerische Lösung erfordert eine diskrete Darstellung des Hamiltonoperators. Eine gängige Methode ist die der finiten Differenzen auf einem äquidistanten Gitter,

$$x_j \equiv x_0 + jh, \quad \psi_j^n \equiv \psi(x_j, t_n) \quad \text{mit} \quad h = \Delta x. \quad (3.6)$$

Der Laplaceoperator $\Delta = \frac{\partial^2}{\partial x^2}$ wird dabei symmetrisch um x_j mit einem Differenzenquotienten approximiert,

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2} \psi(x, t_n) \rightarrow \frac{\psi_{j+1}^{n+1} - 2\psi_j^{n+1} + \psi_{j-1}^{n+1}}{h^2}. \quad (3.7)$$

Da $\hat{H}$ in (3.5) symmetrisch um $t_{n+\frac{1}{2}}$ ausgewertet wird, ist der Diskretisierungsfehler auch in der Ortskoordinate von zweiter Ordnung und der Propagator äquivalent mit dem Crank-Nicolson-Schema [70]

$$\left(1 + i\frac{\tau}{2} H(t_{n+\frac{1}{2}})\right) \psi^{n+1} = \left(1 - i\frac{\tau}{2} H(t_{n+\frac{1}{2}})\right) \psi^n. \quad (3.8)$$

Die Matrix $H(t_{n+\frac{1}{2}})$ ist tridiagonal und besitzt die Diagonal- und Nebendiagonalelemente

$$H^{(j,j)} = \frac{1}{h^2} - \frac{1}{\sqrt{x_j^2 + \alpha^2}} + x_j E(t_{n+\frac{1}{2}}), \quad H^{(j,j\pm 1)} = -\frac{1}{2h^2} \quad (3.9)$$

in Längeneichung bzw.

$$H^{(j,j)} = \frac{1}{h^2} - \frac{1}{\sqrt{x_j^2 + \alpha^2}}, \quad H^{(j,j\pm 1)} = -\frac{1}{2h^2} \mp \frac{i}{2h} A(t_{n+\frac{1}{2}}) \quad (3.10)$$

in Geschwindigkeitseichung. Das Crank-Nicolson-Schema lässt sich in einer Dimension sehr effizient implementieren, da die Anzahl der Rechenoperationen bei der Multiplikation und Inversion einer tridiagonalen Matrix linear mit der Anzahl der Gitterpunkte skaliert.

Die Diskretisierung der Wellenfunktion bestimmt, wie genau das numerische Ergebnis der tatsächlichen Lösung entspricht. Dabei entscheidet der Gitterabstand h darüber, welche Energien in der Wellenfunktion noch aufgelöst werden können. Liegt die höchste zu erwartende Elektronenenergie

Eine alternative, diagonale Darstellung des Laplaceoperators bieten Spektralmethoden durch Transformation in den Impulsraum, während das zeitabhängige Potential im Ortsraum angewendet wird.

bei $U_{\max}$, dann sollte der Gitterabstand nicht größer als $(U_{\max})^{-\frac{1}{2}}$ gewählt werden [55]. Je kleiner h , desto genauer sind die Lösungen der stationären Schrödingergleichung. Die Wahl des Gitterabstandes kann dadurch überprüft werden, ob die Energie des diskretisierten Grundzustandes nah am exakten Wert von $\varepsilon_0 = -0,5$ au liegt. Auch die Wahl der Randbedingungen kann die Genauigkeit des Ergebnisse beeinflussen. Bei hohen Intensitäten steigt die Ionisierung rasant an und die Wellenfunktion breitet sich weit über den Atomradius im feldfreien Fall aus. Dadurch erhöht sich die Anzahl der Gitterpunkte und die für die Lösung benötigte Rechenleistung. Dabei ist es nicht unbedingt nötig, die Wellenfunktion auf dem kompletten Gebiet zu simulieren, da ein großer Teil der Wechselwirkungsdynamik sich nah am Atomkern abspielt. Geeignete Randbedingungen ermöglichen das Simulationsgebiet zu verkleinern und verfälschende Reflexionen an den Rändern zu vermeiden. Im Kontext der zeitabhängigen Schrödingergleichung haben sich die Multiplikation mit einer Maskierungsfunktion [75] oder die Addition eines imaginären, absorbierenden Potentials [76] bewährt. Einige neuere Ansätze beruhen auf einer komplexen Skalierung der Ortsvariablen am Rand des Simulationsgebietes [77, 78] oder implementieren exakte Strahlungsrandbedingungen [79].

3.1.2 Split-step-Verfahren für die nichtlineare Schrödingergleichung

Die für die Strahlpropagation verwendete nichtlineare Schrödingergleichung (2.25) hat in Zylinderkoordinaten mit radialer Symmetrie $\mathcal{E} = \mathcal{E}(r, z)$ die Form

$$\frac{\partial}{\partial z} \mathcal{E}(r, z) = i(\hat{D} + i\hat{N}) \mathcal{E}(r, z) \quad (3.11)$$

$$\text{mit } \hat{D} = \frac{1}{2k_0} \Delta_r = \frac{1}{2k_0} \left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) \quad (3.12)$$

$$\text{und } \hat{N} = \frac{\omega_0}{c} \Delta n(I(r, z)). \quad (3.13)$$

Analog zum vorherigen Abschnitt kann man Gleichung (3.11) formal integrieren und erhält für die Propagation über einen Teilschritt $\eta = \delta z$,

$$\mathcal{E}(r, z_{n+1}) = \hat{U}(z_{n+1}, z_n) \mathcal{E}(r, z_n) \quad (3.14)$$

$$\text{mit } \hat{U}(z_{n+1}, z_n) = e^{i\eta(\hat{D} + \hat{N})} \quad \text{und} \quad z_n \equiv z_0 + n\eta. \quad (3.15)$$

Im Gegensatz zur zeitabhängigen Schrödingergleichung können wir jedoch darauf das Crank-Nicolson-Schema nicht direkt anwenden. Der nichtlineare Brechungsindex Δn hängt von der Intensitätsverteilung $I \sim \mathcal{E}^2$ ab und folglich ist $\hat{N}(z_{n+\frac{1}{2}})$ während des Propagationsschritts bei z_n unbekannt. Eine Lösung bietet das *split-step*-Verfahren, welches die Propagation in einen linearen und nichtlinearen Anteil gemäß den Operatoren $\hat{D}$ und $\hat{N}$ separiert.

Hierzu wird der Propagationsoperator $\hat{U}(z_{n+1}, z_n)$ nach der Baker–Campbell–Hausdorff-Formel in eine symmetrische Form entwickelt [80],

$$\hat{U}(z_{n+1}, z_n) = e^{i\frac{\eta}{2}\hat{D}} e^{i\eta\hat{N}} e^{i\frac{\eta}{2}\hat{D}} + \mathcal{O}(\eta^2). \quad (3.16)$$

Bei sukzessiver Anwendung kann man die linearen Halbschritte zu $e^{i\eta\hat{D}}$ zusammenfassen, und man erhält für die Propagation über zwei Teilschritte

$$\hat{U}(z_{n+2}, z_n) = e^{i\eta\hat{D}} e^{i\eta\hat{N}} \equiv \hat{U}_D \hat{U}_N, \quad (3.17)$$

wobei am Anfang und Ende der Simulation eine Propagation mit $e^{i\frac{\eta}{2}\hat{D}}$ bzw. $e^{-i\frac{\eta}{2}\hat{D}}$ impliziert wird. Für den nichtlinearen Teilschritt wird die analytische Lösung des Propagators $\hat{U}_N$ direkt auf $\mathcal{E}$ angewendet. Nach der Diskretisierung der Radialkoordinaten auf dem Gitter $r_j = j\delta r$ und $\Delta n_j = \Delta n(I(r_j))$ besitzt dieser die Form einer Diagonalmatrix mit den Elementen

$$U_N^{(j)} = \exp\left(i\eta \frac{\omega_0}{c} \Delta n_j\right). \quad (3.18)$$

Die lineare Propagation ist unabhängig von der Propagationskoordinate z und kann mit Crank–Nicolson gelöst werden. Abschließend wird Δn nach jedem Doppelschritt mit dem neuen Wert des elektrischen Feldes bzw. der Intensität aktualisiert.

3.2 DREIDIMENSIONALE BEHANDLUNG DER ZEITABHÄNGIGEN SCHRÖDINGERGLEICHUNG

Anhand des Wasserstoffatoms beschreibe ich nun die Lösung der dreidimensionalen, zeitabhängigen Schrödingergleichung. Eine Verallgemeinerung auf andere Atome wird in der *single active electron*-Näherung durch ein effektives Potential erreicht. Analog zum eindimensionalen Fall könnte man die Schrödingergleichung äquidistant in x -, y - und z -Richtung diskretisieren. Numerisch günstiger ist aber die Darstellung in Kugelkoordinaten, wie der folgende Abschnitt zeigt. Anschließend wird – ähnlich der *split-step*-Methode – ein Verfahren zur Separierung der Variablen beschrieben, da das Crank–Nicolson-Schema in mehreren Dimensionen seine Effizienz verliert.

3.2.1 Die Schrödingergleichung in Kugelkoordinaten

In Sektion 3.1 haben wir bei der Diskretisierung der Wellenfunktion ψ die Methode der finiten Differenzen auf einem äquidistanten Gitter benutzt. Eine andere Art der Diskretisierung sind Spektralmethoden wie z. B. die Entwicklung nach Bloch-Funktionen in Sektion 2.4. Durch die Symmetrie des Wasserstoffatoms ist eine Darstellung in Kugelkoordinaten günstig. Hierbei wird nur die Radialkoordinate auf einem Gitter diskretisiert, während sich

für den winkelabhängigen Anteil die Entwicklung in Kugelflächenfunktionen

$$\psi(r, \theta, \phi) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{1}{r} \xi_l^m(r, t) Y_l^m(\theta, \phi) \quad (3.19)$$

mit der Drehimpulsquantenzahl l und der magnetischen Quantenzahl m anbietet. Diese erfüllen die Orthogonalitätsrelation

$$\int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} \left(Y_{l'}^{m'}(\theta, \phi) \right)^* Y_l^m(\theta, \phi) \sin \theta \, d\theta \, d\phi = \delta_{l,l'} \delta_{m,m'}. \quad (3.20)$$

Im Gegensatz zur Diskretisierung in kartesischen Koordinaten, bei der man in allen drei Dimensionen eine hohe Anzahl an Gitterpunkten benötigt, reicht in dieser Darstellung eine Entwicklung in weniger als 100 Kugelflächenfunktionen [81]. Für linear polarisiertes Licht in z -Richtung lautet der Hamiltonoperator in Längeneichung

$$\hat{H} = -\frac{1}{2} \frac{1}{r^2} \left(\frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) - \hat{L}^2 \right) - \frac{1}{r} + E_z(t) r \cos \theta \quad (3.21)$$

mit dem Drehimpulsoperator

$$\hat{L}^2 = -\frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta} - \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2}. \quad (3.22)$$

Hier sei erwähnt, dass die Singularität bei $r = 0$ nicht zum numerischen Gitter dazugehört und die in (3.19) implizite Substitution der Radialfunktion $r R_l^m(r, t) = \xi_l^m(r, t)$ zu $\xi_l^m(0, t) = 0$ führt. Der Laplaceoperator in (3.21) sieht noch abschreckend aus. Kugelkoordinaten bieten jedoch einige Vorteile: Erstens vertauscht $\hat{H}$ mit der z -Komponente des Drehimpulsoperators $\hat{L}_z = -i\partial_\phi$, also $[\hat{H}, \hat{L}_z] = 0$. Folglich ist der Erwartungswert von L_z , die magnetische Quantenzahl, eine Erhaltungsgröße und das Problem reduziert sich auf zwei räumliche Dimensionen r und θ . Sei im Folgenden die magnetische Quantenzahl in der Anfangsbedingung festgelegt, z. B. $m = 0$ für den Grundzustand des Wasserstoffatoms. Die Summe über m in (3.19) fällt dann weg, und zur besseren Darstellung unterschlagen wir den Index m in der Radialfunktion ξ_l . Zweitens erfüllen die Kugelflächenfunktionen die Eigenwertgleichung $\hat{L}^2 Y_l^m = l(l+1) Y_l^m$, sodass der winkelabhängige Teil des Laplaceoperators einer Multiplikation entspricht. Drittens wird der radiale Teil durch Anwendung auf ξ/r wesentlich vereinfacht. Setzt man (3.19) in

Die Beziehung zwischen Kartesischen Koordinaten und Kugelkoordinaten lautet
 $x = r \sin \theta \cos \phi$,
 $y = r \sin \theta \sin \phi$,
 $z = r \cos \theta$.

Die Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung in Geschwindigkeitseichung ist der in Längeneichung prinzipiell ähnlich, aber durch zusätzliche Kopplung aufwendiger zu behandeln. Hier sei auf die Arbeit von Muller [82] verwiesen.

die zeitabhängige Schrödingergleichung (2.41) ein und nutzt die Orthonormalität der Kugelflächenfunktionen aus, erhält man

$$i \frac{\partial}{\partial t} \xi_l(r, t) = \left(-\frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial r^2} + \frac{l(l+1)}{2r^2} - \frac{1}{r} \right) \xi_l + E_z(t) r \sum_{l'} \Gamma_{l,l'}^m \xi_{l'} \quad (3.23)$$

$$\begin{aligned} \text{mit } \Gamma_{l,l'}^m &= \int_0^{2\pi} \int_0^\pi (Y_l^m(\theta, \phi))^* \cos \theta Y_{l'}^m(\theta, \phi) \sin \theta d\theta d\phi \\ &= \gamma_l^m \gamma_{l'}^m \int_{-1}^1 (P_l^m(x))^* x P_{l'}^m(x) dx, \end{aligned} \quad (3.24)$$

$$\text{und } \gamma_l^m = \sqrt{\frac{2l+1}{2} \frac{(l-m)!}{(l+m)!}}. \quad (3.25)$$

Die Wechselwirkung mit dem Laserfeld koppelt also die Radialfunktionen ξ_l mit verschiedenen Drehimpulsquantenzahlen. Der Kopplungsfaktor Γ ergibt sich aus der Darstellung der Kugelflächenfunktionen $Y_l^m(\theta, \phi) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \cdot \gamma_l^m P_l^m(\cos \theta) e^{im\phi}$. Mit Hilfe der Rekursionsformel für die zugeordneten Legendre-Polynome P_l^m wird Gleichung (3.24) zu

$$\Gamma_{l,l'}^m = \delta_{l',l-1} \cdot c_{l-1}^m + \delta_{l',l+1} \cdot c_l^m \quad \text{mit} \quad c_l^m = \sqrt{\frac{(l+1)^2 + m^2}{(2l+1)(2l+3)}}. \quad (3.26)$$

Die Summe in (3.23) ist somit nur für $|l - l'| = 1$ ungleich null, und das Gleichungssystem vereinfacht sich zu

$$i \frac{\partial}{\partial t} \xi_l(r, t) = \hat{H}_0 \xi_l + E_z(t) r (c_{l-1}^m \xi_{l-1} + c_l^m \xi_{l+1}) \quad (3.27)$$

mit dem ungestörten Hamiltonoperator $\hat{H}_0$.

3.2.2 Separierung des Propagationsoperators

Nach Diskretisierung der radialen Koordinate, $r \rightarrow r_j$, und der Zeit, $t \rightarrow t_n$, können wir auf (3.27) das Crank-Nicolson-Schema anwenden und erhalten für die Entwicklung der Radialfunktion ξ über einen Zeitschritt τ ,

$$\left(\mathbb{1} + i \frac{\tau}{2} \mathbf{H} \right) \xi^{n+1} = \left(\mathbb{1} - i \frac{\tau}{2} \mathbf{H} \right) \xi^n, \quad (3.28)$$

wobei ξ^n ein Vektor in j und l zum Zeitpunkt t_n ist. In einer Raumdimension ist der Hamiltonoperator tridiagonal und somit leicht invertierbar. In zwei Dimensionen (r und l) geht dieser Vorteil verloren, da $\mathbf{H}$ nicht mehr tri- sondern pentadiagonal ist. Daher ist es sinnvoll, den Hamiltonoperator in einen atomaren Teil $\mathbf{H}_0$ und einen Wechselwirkungsteil $\mathbf{H}_W$ zu separieren, welche jeweils in r bzw. l tridiagonal sind, und man kann schreiben

$$\mathbb{1} \pm i \frac{\tau}{2} \mathbf{H} = \left(\mathbb{1} \pm i \frac{\tau}{2} \mathbf{H}_0 \right) \left(\mathbb{1} \pm i \frac{\tau}{2} \mathbf{H}_W \right) + \frac{\tau^2}{4} \mathbf{H}_0 \mathbf{H}_W. \quad (3.29)$$

Durch das Teilen der Matrix $\mathbf{H}$ entsteht zwar ein Fehler, dieser ist jedoch von derselben Größenordnung wie das zugrundeliegende Diskretisierungsverfahren. Für Gleichung (3.28) gilt dann näherungsweise

$$\begin{aligned} \left(\mathbb{1} + i\frac{\tau}{2}\mathbf{H}_0 \right) \left(\mathbb{1} + i\frac{\tau}{2}\mathbf{H}_W(t_{n+1}) \right) \xi^{n+1} \\ = \left(\mathbb{1} - i\frac{\tau}{2}\mathbf{H}_0 \right) \left(\mathbb{1} - i\frac{\tau}{2}\mathbf{H}_W(t_n) \right) \xi^n. \end{aligned} \quad (3.30)$$

Im Gegensatz zu Crank-Nicolson wird hier der Hamiltonoperator nicht in der Mitte des Zeitschritts ausgewertet, sondern am Anfangs- und Endpunkt. Dies ist notwendig, da $\mathbf{H}_0$ und $\mathbf{H}_W$ nicht vertauschen und nur so die globale Unitarität des Propagationsoperators erhalten bleibt. Gleichung (3.30) kann mit zwei Crank-Nicolson-Schritten gelöst werden,

$$\left(\mathbb{1} + i\frac{\tau}{2}\mathbf{H}_0 \right) \chi^{n+\frac{1}{2}} = \left(\mathbb{1} - i\frac{\tau}{2}\mathbf{H}_W(t_n) \right) \xi^n, \quad (3.31)$$

$$\left(\mathbb{1} + i\frac{\tau}{2}\mathbf{H}_W(t_{n+1}) \right) \xi^{n+1} = \left(\mathbb{1} - i\frac{\tau}{2}\mathbf{H}_0 \right) \chi^{n+\frac{1}{2}}, \quad (3.32)$$

wobei χ eine Hilfsfunktion ist. Im ersten Schritt (3.31) erfolgt die implizite Matrixinversion im Unterraum der Gitterpunkte r_i unabhängig für alle Drehimpulsquantenzahlen l , während im darauf folgenden Schritt (3.32) die Inversion im l -Raum in einer Schleife über alle Gitterpunkte durchgeführt wird. Daher heißt diese Methode *alternating direction implicit* [83].

3.2.3 Norm und Polarisationsdichte

Im Gegensatz zum eindimensionalen Fall ist die Berechnung der Norm und der Polarisationsdichte beim dreidimensionalen Wasserstoffatom nicht trivial. Denn die Lösung der Schrödingergleichung liefert uns nicht direkt die Wellenfunktion ψ , sondern ein Set von Radialfunktionen ξ_l . Mit der Entwicklung in orthonormale Kugelflächenfunktionen (3.19) erhalten wir für die Norm

$$\int |\psi(\mathbf{r}, t)|^2 d^3r = \sum_{l=0}^{l_{\max}} \int |\xi_l(r, t)|^2 dr. \quad (3.33)$$

Hierbei ist $l_{\max}$ die größte in der Entwicklung berücksichtigte Drehimpulsquantenzahl.

Die makroskopische Polarisationsdichte eines atomaren Gases mit der Dichte ρ_A , welche z. B. in eine Pulspropagationsgleichung eingesetzt werden könnte, berechnet man aus dem Erwartungswert des Dipolmoments,

$$\mathbf{P}(t) = \rho_A \mathbf{d} \quad \text{mit} \quad \mathbf{d} = - \int \mathbf{r} |\psi(\mathbf{r}, t)|^2 d^3r. \quad (3.34)$$

Für ein in z -Richtung polarisiertes, elektrisches Feld wird aber nur in diese Richtung ein Dipolmoment induziert. Wir brauchen also lediglich die z -Komponente des Dipolmoments berücksichtigen,

$$\begin{aligned}
 d_z &= - \int r \cos \theta |\psi(\mathbf{r}, t)|^2 d^3r = - \sum_{l, l'=0}^{l_{\max}} \int (\xi_l(r, t))^* \xi_{l'}(r, t) \Gamma_{ll'}^m dr \\
 &= -2 \sum_{l=0}^{l_{\max}-1} c_l^m \int \operatorname{Re} \{ (\xi_{l+1}(r, t))^* \xi_l(r, t) \} dr.
 \end{aligned}
 \tag{3.35}$$

Für die diskrete Lösung ξ_l^n aus der Schrödingergleichung wird das Integral in (3.33) und (3.35) numerisch nach der Trapez- oder Simpsonregel approximiert.

ZUSAMMENFASSUNG DER PUBLIKATIONEN

Dieses Kapitel liefert eine Übersicht über die dieser kumulativen Dissertation zugrunde liegenden Publikationen. Den Fokus lege ich dabei auf die Motivation zu diesen Arbeiten und die verwendeten Methoden. Abschließend stelle ich heraus, welchen Beitrag ich jeweils geleistet habe. Eine übergreifende Bewertung der Ergebnisse folgt im nächsten Kapitel.

4.1 NONINSTANTANEOUS POLARIZATION DYNAMICS IN DIELECTRIC MEDIA

*M. Hofmann,
J. Hyyti et al.,
Optica 2, 151 (2015).*

Frequency resolved optical gating (FROG) ist eine weit verbreitete Methode zur Charakterisierung optischer Femtosekunden-Pulse. Hierbei werden zwei identische Kopien eines Pulses z.B. durch einen Strahlteiler erzeugt, welche zeitlich zueinander verschoben in einem nichtlinearen Medium in Wechselwirkung treten. Das Mischsignal wird mit einem Spektrometer aufgenommen und für verschiedene zeitliche Verzögerungen in einer FROG-Spur festgehalten. Über einen iterativen, numerischen Algorithmus kann schließlich aus der gespeicherten FROG-Spur die Pulsform und die spektrale Phase ermittelt werden [45]. Häufig wird als Signal die zweite Harmonische (*second harmonic generation, SHG*) verwendet, welche durch die $\chi^{(2)}$ -Nichtlinearität entsteht. Durch die hohe Konversionseffizienz ist SHG-FROG ein Standardverfahren zur Pulscharakterisierung. Nachteilig ist, dass mit diesem Verfahren nicht eindeutig festgestellt werden kann, welcher Bereich die Vorder- bzw. Hinterflanke des Pulses ist. Außerdem existieren $\chi^{(2)}$ -Wechselwirkungen nur in Medien ohne Inversionssymmetrie. Diese Uneindeutigkeit kann durch die Verwendung der dritten Harmonischen (*third harmonic generation, THG*) beseitigen werden, welche auch in inversionssymmetrischen Medien auftritt. Jedoch liefert solch ein $\chi^{(3)}$ -Prozess ein schwächeres Signal als SHG [84]. Essentiell für die FROG-Verfahren ist die Annahme von instantanen Nichtlinearitäten $\chi^{(n)}$, d. h. dass die Polarisation dem elektrischen Feld verzögerungsfrei folgt. Ist die Reaktion jedoch verzögert, so verlängert sich die ermittelte Pulsdauer. Bei bekannter Pulsdauer kann man so auf eine Polarisationsverzögerung des Mediums schließen.

In Publikation [A] wird eine interferometrische THG-FROG-Methode an

Experiment

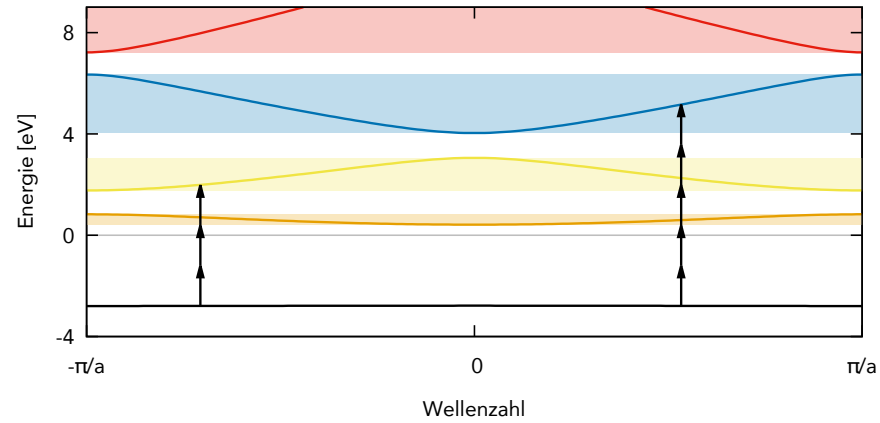


Abbildung 3: Die berechneten Eigenenergien ε_k^n der Bloch-Funktionen in Titandioxid sind als Linien dargestellt und die Leitungsbander farblich hinterlegt. Die unterste, schwarze Linie mit $\varepsilon < 0$ markiert das oberste Valenzband. Mögliche 3- und 5-Photonen-Übergänge vom obersten Valenz- in das zweite bzw. dritte Leitungsband sind durch schwarze Pfeile dargestellt, wobei ein Pfeil der Photonenenergie von 1.59 eV entspricht.

dünnen Kristallschichten angewendet, welche eine Pulscharakterisierung unabhängig von der verwendeten Wellenlänge ermöglicht. Hier ist das THG-Signal stärker als an einem dreidimensional ausgedehnten Kristall, weshalb die Methode empfindlich genug für unverstärkte Pulse im Nanojoule-Bereich ist [85]. Ein Titan:Saphir-Laser liefert laut Hersteller Pulse mit einer Halbwertsbreite von 7,5 fs und einer mittleren Wellenlänge von 780 nm. Messungen an Siliziumdioxid ergeben Pulslängen von 10,1 fs und dienen als Referenzwert, da eine instantane Polarisierung angenommen wird. Die Abweichungen zu den obigen Herstellerangaben von 7,5 fs lassen sich auf kleine Fehler in der Dispersionskompensation sowie auf die unvermeidbare, räumliche Aberration zurückführen. Die ermittelte Pulslänge unter Verwendung von Titandioxid beträgt hingegen 15,7 fs. Dieser im Vergleich zu Siliziumdioxid deutlich höhere Wert lässt auf eine Polarisationsverzögerung in Titandioxid schließen. Das errechnete Intensitätsprofil wird als Faltung der Referenzintensität aus der Messung an Siliziumdioxid mit einem einseitigen, exponentiellen Kern $\exp(-\frac{t}{\tau})$ modelliert, wobei τ die Dephasierungszeit definiert. Eine Dekonvolutionsanalyse ergibt $\tau = 6,5$ fs.

Simulationen
siehe Sektion 2.4

Die experimentellen Befunde wollen wir mit einem quantenmechanischen Modell der Licht-Materie-Wechselwirkung vergleichen. Dazu stelle ich ein periodisches Modellpotential nach [86] auf, welches für Titandioxid mit einem $\tanh^4$ -Term erweitert wird. Die Modellparameter werden variiert, bis sie – nach Lösen der stationären Schrödingergleichung – die Materialkonstanten wie Bandlücke und effektive Elektronenmasse so gut wie möglich reproduzieren. Letztere ist definiert als inverse Krümmung der Bandkante des ersten Leitungsbandes an dessen Minimum. In der Bandstruktur der

Bloch-Zustände ist die Ursache für die Polarisationsverzögerung bereits erkennbar, siehe Abbildung 3. Im Unterschied zu Siliziumdioxid ist die Bandlücke in Titandioxid recht klein und die dritte Harmonische resonant mit dem Übergang vom Valenzband ins zweite Leitungsband. Die Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung und eine anschließende Dekonvolution bestätigen die experimentellen Ergebnisse mit einer Dephasierungszeit von 8 fs. Es kann dabei ausgeschlossen werden, dass die ermittelte Polarisationsverzögerung ein Effekt der freien Ladungsträger einzelner Bänder ist, da die optischen Interbandübergänge in der Stromdichte dominieren. Damit ermöglicht das interferometrische THG-FROG-Verfahren die Messung einer der kürzesten, bisher nachgewiesenen nichtinstantanen Reaktionen eines Dielektrikums bei dieser Wellenlänge. Neueste Entwicklungen der Attosekundspektroskopie erlauben es sogar, die Polarisationsverzögerung im nicht-resonanten Fall im Bereich von 45 bis 115 as zu messen. Die in [87] vorgestellte Methode ist jedoch auf gasförmige Materie beschränkt.

Mein Beitrag zu dieser Publikation liegt in der quantenmechanischen Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung im Festkörper. Dazu gehört die Modellierung eines geeigneten Potentials, die Lösung der stationären sowie der zeitabhängigen Schrödingergleichung und die Berechnung von (instantaner) Strom- und Polarisationsdichte. Beteiligt war ich zudem an der Auswertung und Diskussion der numerischen Ergebnisse.

*Herausstellung des
Eigenanteils*

4.2 FEMTOSECOND FILAMENTATION BY INTENSITY CLAMPING AT A FREEMAN RESONANCE

*M. Hofmann und
C. Brée, Phys. Rev. A
92, 013813 (2015).*

Publikation [B] beschäftigt sich mit dynamischen Resonanzen in atomaren Gasen und deren Einfluss auf die Entstehung von Femtosekunden-Filamenten. Lorient et al. [28] stellten ausgehend von den Resultaten eines Pump-Probe-Experiments das Standardmodell der Femtosekunden-Filamentation erstmals in Frage und machten Terme höherer Ordnung im Kerr-Effekt (*higher-order Kerr effect, HOKE*) für die Sättigung des Brechungsindex verantwortlich. Gleichung (2.26) wird dabei in ihrem Modell durch

$$\Delta n(I) = n_2 I + n_4 I^2 + n_6 I^3 + \dots \quad (4.1)$$

ersetzt. Anhand der ermittelten Werte für n_{2k} wurde gefolgert, dass die Defokussierung durch die HOKE-Terme einsetzt, bevor die Ionisation des Mediums und somit die Plasmadefokussierung eine nennenswerte Größenordnung erreicht. Dieser Effekt würde ein nahezu plasmafreies Filament ermöglichen. Motiviert durch die Debatte um HOKE wollen wir ein mit einem starken Laserpuls wechselwirkendes Wasserstoffatom auf Resonanzen untersuchen. Dazu löse ich die eindimensionale, zeitabhängige Schrödingergleichung (siehe Sektion 3.1) für einen Femtosekunden-Puls in einem Intensitätsbereich von 0 bis 40 TW/cm^2 bei einer Wellenlänge von 800 nm. Wird

*numerische
Untersuchung
atomarer Resonanzen
im Laserfeld*

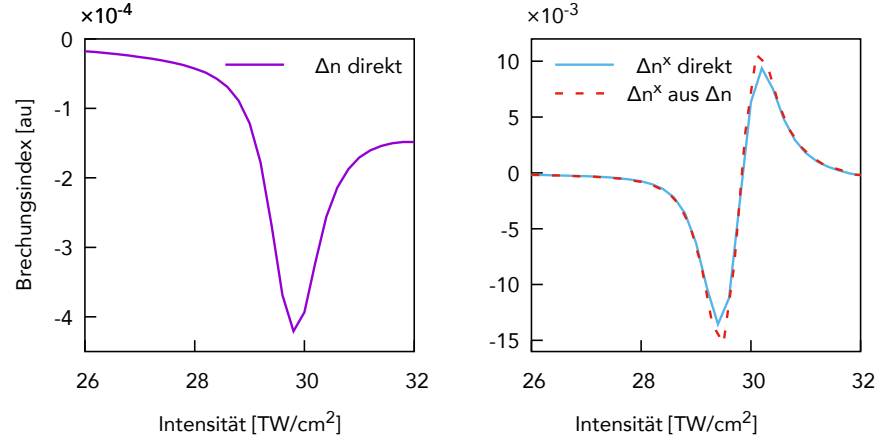


Abbildung 4: Die linke Seite zeigt den durch einen Pump-Puls selbstinduzierten, intensitätsabhängigen Brechungsindex $\Delta n(I)$ von atomaren Wasserstoff in der Nähe der Resonanz bei $29,8 \text{ TW/cm}^2$. Auf der rechten Seite ist der kreuzinduzierte Brechungsindex $\Delta n^x(I)$ mit einem asymmetrischen Resonanzprofil abgebildet, welcher ein zusätzlicher Probe-Puls erfahren würde (durchgängige Linie). Die von uns aufgestellte Relation $n^x(I) = n(I) + I \frac{dn}{dI}$ wird bestätigt (gestrichelte Linie).

die maximale Amplitude über mehrere Zyklen konstant gehalten (*flattop pulse*), so kann der Puls in diesem Zeitintervall als quasiperiodisch betrachtet und die Floquet-Theorie angewendet werden. Anstatt die Floquet-Gleichung direkt zu lösen, lässt sich die Besetzung der Floquet-Zustände aus der numerischen Simulation der zeitabhängigen Wellenfunktion $\psi(x,t)$ berechnen [64]. Diese Analyse bestätigt, dass sich die Energieniveaus der Rydbergzustände durch den dynamischen Stark-Effekt um das ponderomotorische Potential verschieben, während die Grundzustandsenergie weitgehend konstant bleibt, vgl. Abbildung 5. Dabei treten sogenannte Freeman-Resonanzen auf, wenn die Energiedifferenz zwischen dem Grundzustand und einem verschobenen, angeregten Zustand einem Vielfachen der Photonenenergie entspricht. Sie sind sowohl in der Ionisation als auch im Brechungsindex in Form einer Resonanzkurve sichtbar. Im Experiment ist der selbstinduzierte, intensitätsabhängige Brechungsindex $n(I)$ eines einzelnen Pulses nicht direkt messbar, sondern nur der durch einen zusätzlichen, schwachen Probe-Puls kreuzinduzierte Brechungsindex $n^x(I)$. Verglichen mit $n(I)$ sind die Resonanzen in $n^x(I)$ viel stärker ausgeprägt und besitzen ein antisymmetrisches Profil, siehe Abbildung 4. Dieses Verhalten ist verwandt mit dem *plasma grating*-Effekt [88]. Wir können zeigen, dass der Zusammenhang zwischen selbst- und kreuzinduziertem Brechungsindex durch $n^x(I) = n(I) + I \frac{dn}{dI}$ gegeben ist, welcher eine Verallgemeinerung der Beziehung zwischen den Kerr-Koeffizienten $n_{2j}^x = (j+1)n_{2j}$ darstellt [6]. In der Nähe einer Resonanz variiert $n(I)$ schnell mit der Intensität I , sodass die Ableitung $\frac{dn}{dI}$ entsprechend groß wird.

von optischen Pulsen untersuchen wir mit der paraxialen Wellengleichung (3.11), in welche der nichtlineare, selbstinduzierte Brechungsindex aus den atomaren Simulationen eingesetzt wird. Hierzu lösen wir zusätzlich die dreidimensionale, zeitabhängige Schrödingergleichung mit einem effektiven Potential für Argon und vergleichen $\Delta n(I)$ mit dem Standardmodell. Im Gegensatz zu letzterem sind Resonanzen in den *ab initio*-Ergebnissen für Argon deutlich erkennbar. Es zeigt sich, dass sich abhängig von den Anfangsbedingungen Filamente mit unterschiedlichen Parametern ausbilden. Dabei entspricht die maximale Intensität im Filament (*clamping intensity*) bevorzugt der Intensität, bei welcher sich die Energieniveaus der Rydbergzustände in Multiphotonenresonanz mit dem Grundzustand schieben. In einigen Simulationen ist sogar die Ausbildung von Filamenten unterhalb der kritischen Pulsleistung für Selbstfokussierung möglich. Eine Stabilitätsanalyse, bei der nach stationären Lösungen der paraxialen Wellengleichung gesucht wird, bestätigt diese Beobachtung. Hierfür nehmen wir für die Form eines Solitons $\mathcal{E}(r, z) = e^{i\beta z} \phi_\beta(r)$ an und erhalten aus (3.11) eine gewöhnliche Differentialgleichung

$$\Delta_\perp \phi_\beta(r) = 2k_0 \left(\frac{\omega_0}{c} \Delta n - \beta \right) \phi_\beta(r), \quad (4.2)$$

welche für verschiedene Werte des Propagationsparameters β mit einem Einfach-Schießverfahren (*shooting method*) gelöst wird [89].

Mein Eigenanteil bestand hauptsächlich in der Entwicklung eines effizienten Lörsers der zeitabhängigen Schrödingergleichung für Einelektronensysteme in einer bzw. drei Dimensionen. Die dazugehörigen Simulationen in Sektionen II und III (eindimensionaler, atomarer Wasserstoff in Wechselwirkung mit einem Laserpuls inklusive der Floquet-Analyse) wurden von mir durchgeführt. Idee, Planung und Auswertung sowie Verschriftlichung entstanden gemeinsam mit Carsten Brée.

Herausstellung des
Eigenanteils

4.3 ADIABATIC FLOQUET MODEL FOR THE OPTICAL RESPONSE IN FEMTOSECOND FILAMENTS

M. Hofmann und
C. Brée, *arXiv*,
1601.05933 (2016).

In Publikation [C] wird die Verbindung zwischen resonant verstärkter Ionisation (*resonantly enhanced multiphoton ionization*) und Resonanzen im selbstinduzierten Brechungsindex genauer untersucht. Ich simuliere erneut ein eindimensionales Wasserstoffatom in Wechselwirkung mit einem infraroten Femtosekunden-Puls. Um die Wirkung der resonanten Multiphotonübergänge zwischen Floquet-Zuständen zu verdeutlichen, wird die Anzahl der *flat-top*-Zyklen von 40 auf 80 im Vergleich zu [B] verdoppelt. Unsere Vermutung ist, dass – wie im Standardmodell der Femtosekunden-Filamentation angenommen – gebundene Elektronen über den Kerr-Effekt zum Brechungsindex beitragen und der defokussierende Term allein auf ionisierte Elektronen zurückzuführen ist. Da die Ionisation an einer Resonanz sprun-

numerisches
Experiment

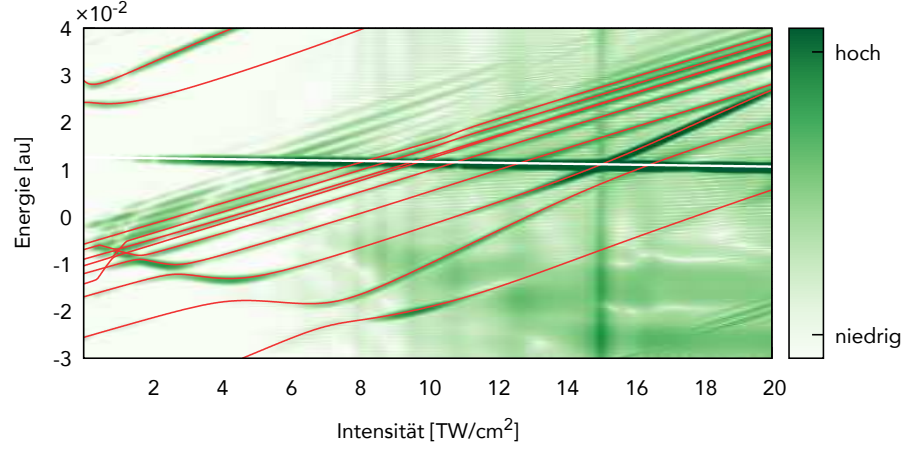


Abbildung 5: Die logarithmische Farbkodierung beschreibt die Besetzung der Floquet-Zustände mit Energie ε , welche direkt aus der Wellenfunktion ψ nach [64] berechnet wurde, in Abhängigkeit der Intensität eines 80-Zyklen langen *flatter*-Pulses. Überlagernd sind die Realteile der komplexen Quasienergien als durchgezogene Linien eingezeichnet, welche aus der Diagonalisierung der Propagators $U(T)$ gewonnen wurden. Die weiße Linie entspricht dabei der Grundzustandsenergie im 9ten Floquet-Block. Multiphotonenübergänge vom metastabilen Grundzustand in angeregte Zustände finden dort statt, wo die weiße Linie die roten schneidet. Die Übereinstimmung mit dem darunterliegenden Plot bestätigt die Anwendbarkeit der Floquet-Theorie auf die von uns verwendeten Femtosekunden-Pulse.

haft ansteigt, sieht man deren Beitrag nach dem Drude-Modell auch im Brechungsindex. Um unsere Vermutung zu überprüfen, berechne ich einerseits den nichtlinearen Brechungsindex Δn_P direkt aus der Polarisationsdichte, sowie ein $\Delta n_S = n_2 I + \frac{\rho}{2\rho_c}$ nach dem Standardmodell (2.26). Für letzteres liefert eine Projektion der Wellenfunktion auf Kontinuumszustände die Ionisation $\rho(I)$, und ein linearer Fit an Δn_P für kleine Intensitäten ergibt den Kerr-Koeffizienten n_2 . Ein Vergleich von Δn_P mit Δn_S bestätigt, dass die verstärkte Ionisation sowie die Besetzung von Rydbergzuständen für die Resonanzen im Brechungsindex verantwortlich sind. Gleichzeitig bedeutet dies, dass höhere Ordnungen des Kerr-Effekts eine vernachlässigbare Rolle spielen. Ich wiederhole die Simulationen mit realistischeren, $\cos^2$ -förmigen Pulsen und sehe ähnliche, unsere Annahme bestätigende Ergebnisse. Die im Standardmodell vorgenommene Unterteilung in gebundene und freie Elektronen, welche fokussierend bzw. defokussierend wirken, scheint somit gerechtfertigt. Die phänomenologischen Ionisierungsraten vernachlässigen jedoch angeregte Zustände und somit die beschriebenen Resonanzeffekte. Wir schlagen daher ein modifiziertes Modell mit einer quantenmechanisch berechneten Ionisierungsrate vor. Für Pulse mit einer sich langsam ändernden Einhüllenden kann man die zeitliche Störung der Schrödingergleichung als quasiperiodisch annehmen und die Floquet-Theorie anwenden [59]. Unter der Voraussetzung von ionisierenden Randbedingungen lassen sich so me-

tastabile Zustände und die dazugehörigen Übergangsraten ins Kontinuum berechnen (siehe Kapitel 2.3). Nach Diagonalisierung des Zeitentwicklungsoperators über einen optischen Zyklus T erhalten wir die Floquet-Multiplikatoren $e^{i\epsilon T}$ mit den komplexen Quasienergien ϵ . Deren Realteil ist äquivalent mit den Quasienergien aus der hermiteschen Fourier-Theorie, welche in [B] berechnet wurden (siehe Abbildung 5), während der Imaginärteil die Zerfallsrate $\Gamma = -2 \operatorname{Im} \epsilon$ der metastabilen Zustände bestimmt. Da für eine sich langsam verändernde Einhüllende das Atom im metastabilen Grundzustand ψ_0 verbleibt, ist die Ionisierung vollständig durch Γ_0 bestimmt. Wir ersetzen daher in Gleichung (2.27) die phänomenologische Ionisierungsrate $W(I)$ durch die Zerfallsrate $\Gamma_0(I)$ und berechnen den nichtlinearen Brechungsindex ansonsten gemäß Standardmodell mit Gleichung (2.26). Dieses adiabatische Floquet-Resonanz-Modell liefert eine beeindruckende Übereinstimmung mit den Ergebnissen der zeitabhängigen Schrödingergleichung für Pulse bis zu 90 fs. Werden die Pulse kürzer, so verschmieren die Resonanzen und die Ionisation ist geringer als mit dem adiabatischen Modell vorhergesagt. Zur Beschreibung der Filamentationsdynamik im Sub-Pikosekundenbereich scheint dieses Modell aber eine potentielle Alternative zum bestehenden Standardmodell zu sein.

Die atomaren Simulationen, welche in Teil II von [C] beschrieben sind und einen kausalen Zusammenhang zwischen der durch Resonanzen verstärkten Ionisation und den Ausschlägen im Brechungsindex herstellen, wurden von mir durchgeführt. Idee, Planung und Auswertung sowie Verschriftlichung entstanden wiederum in Zusammenarbeit mit Carsten Brée.

*Herausstellung des
Eigenanteils*

PUBLIKATIONSÜBERGREIFENDES FAZIT

Um die bei einem Experiment beobachteten Phänomene erklären zu können, versuchen Physiker die mathematische Beschreibung auf das Wesentliche zu reduzieren und den dahinterliegenden Effekt zu isolieren. Da die Realität sehr komplex ist, bedient man sich dabei vereinfachender Annahmen und bewährter Modelle. Hierbei sollte man bedenken, dass Modelle nur eine begrenzte Gültigkeit besitzen. Computersimulationen als dritte Säule der Physik und Bindeglied zwischen Theorie und Experiment sind geeignet, die theoretischen Modelle auf ihre physikalische Legitimation hin zu überprüfen [90]. Die für diese Arbeit durchgeführten, numerischen Untersuchungen auf Basis der fundamentalen Quantenmechanik zeigen beispielsweise, dass im Modell vernachlässigte Resonanzen einen entscheidenden Einfluss auf gemessene Größen haben.

So wird bei Pulscharakterisierungsverfahren wie FROG die nichtlineare Reaktion eines Mediums auf einen Laserpuls als instantan angenommen, falls die Wellenlänge fern einer Resonanz und das Medium annähernd dispersionsfrei ist. In Publikation [A] stellen wir fest, dass diese Annahme in Titandioxid bei einer Wellenlänge im Infraroten für die Fundamentale erfüllt ist, jedoch nicht für die dritte Harmonische. Durch die geringe Bandlücke und die hohe Konversionseffizienz für $\chi^{(3)}$ -Prozesse ist der Effekt der Polarisationsverzögerung schon bei langen Wellenlängen stark ausgeprägt. Aber auch in Siliziumdioxid ist die Annahme einer instantanen Polarisation auf Wellenlängen von über 600 nm beschränkt. Allgemein sollte man darauf achten, dass das Material weder bei der Fundamentalen, noch bei eventuell vorhandenen, höheren Harmonischen resonante Übergänge in Leitungsbänder aufweist.

Ähnlich verhält es sich bei der Modellierung von Femtosekunden-Filamenten in Gasen. Hier treten in der Wechselwirkung mit den Atomen keine Resonanzen auf, solange die Intensität klein und die Wellenlänge hinreichend groß ist. Mit ansteigender Intensität verschieben sich jedoch die Energieniveaus der angeregten Zustände, sodass Multiphotonenresonanzen mit dem Grundzustand auftreten. Solche Resonanzen begünstigen das Entstehen von Filamenten wie in [B] gezeigt, werden jedoch im Standardmodell der Femtosekunden-Filamentation nicht berücksichtigt. Hinzu kommt, dass die perturbative Beschreibung der Polarisationsdichte im Intensitätsbe-

reich eines Filaments nicht mehr konvergiert [35]. So beruht auch das *higher-order Kerr*-Modell, welches die Sättigung des nichtlinearen Brechungsindex durch Terme höherer Ordnung in der Intensität zu erklären versucht, auf einer fehlerhaften Annahme.

Unser adiabatisches Floquet-Resonanz-Modell aus [C] stellt eine Alternative zum Standardmodell unter Berücksichtigung resonant verstärkter Ionisation dar. Die Modellierung des Beitrags gebundener Elektronen mittels einer perturbativen Beschreibung ist in diesem Modell ebenfalls nur für kleine Intensitäten im resonanzfreien Bereich gültig. Bei hohen Intensitäten und im Fall von Resonanzen können wir aber zeigen, dass der relative Beitrag gebundener Elektronen klein gegenüber der plasmabedingten Änderung des Brechungsindex und ein eventueller Fehler vernachlässigbar ist. Die Anwendbarkeit unseres Modells ist durch die Länge des Pulses beschränkt, da wir die Gültigkeit des adiabatischen Theorems voraussetzen. Dessen Verallgemeinerung auf die Floquet-Theorie besagt, dass bei genügend langsamer Variation der Einhüllenden das System im metastabilen Grundzustand zur jeweiligen instantanen Intensität verbleibt und keine Übergänge in angeregte Floquet-Zustände stattfinden [59]. Resonanzen zwischen dem Grundzustand und den Rydbergzuständen gehen dabei indirekt über die resonant verstärkte Ionisation ein. Bei sehr kurzen Pulsen, welche nur wenige Zyklen lang sind, ist jedoch zu erwarten, dass diese Näherung zusammenbricht. Um unser Modell für kurze Pulse zu erweitern, müsste eine nicht-adiabatische Näherung für die Ionisierungsrate gefunden und für eine quantenmechanische Beschreibung der Polarisationsdichte die Beiträge durch Übergänge zwischen Floquet-Zuständen berücksichtigt werden.

LITERATUR

- [1] Y. Shen, *The principles of nonlinear optics* (Wiley-Interscience, 2003).
- [2] T. H. Maiman, „Stimulated Optical Radiation in Ruby“, *Nature* **187**, 493 (1960).
- [3] C. Denz, „Nichtlineare Optik: Der Beginn einer Erfolgsgeschichte“, *Physik J.* **11**, 31 (2012).
- [4] P. A. Franken, A. E. Hill et al., „Generation of optical harmonics“, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118 (1961).
- [5] J. A. Armstrong, N. Bloembergen et al., „Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric“, *Phys. Rev.* **127**, 1918 (1962).
- [6] R. Boyd, *Nonlinear optics* (Elsevier Science, 2013).
- [7] G. New, *Introduction to nonlinear optics* (Cambridge University Press, 2011).
- [8] M. Schubert und B. Wilhelmi, *Einführung in die nichtlineare Optik: Klassische Beschreibung* (B. G. Teubner, 1971).
- [9] L. E. Hargrove, R. L. Fork und M. A. Pollack, „Locking of He-Ne laser modes induced by synchronous intracavity modulation“, *Appl. Phys. Lett.* **5**, 4 (1964).
- [10] A. J. Demaria, C. M. Ferrar und G. E. Danielson, „Mode locking of a Nd³⁺-doped glass laser“, *Appl. Phys. Lett.* **8**, 22 (1966).
- [11] N. Bloembergen, „From nanosecond to femtosecond science“, *Rev. Mod. Phys.* **71**, S283 (1999).
- [12] D. E. Spence, P. N. Kean und W. Sibbett, „60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser“, *Opt. Lett.* **16**, 42 (1991).
- [13] J. Zhou, G. Taft et al., „Pulse evolution in a broad-bandwidth Ti:sapphire laser“, *Opt. Lett.* **19**, 1149 (1994).
- [14] T. Brabec und F. Krausz, „Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics“, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000).
- [15] D. Strickland und G. Mourou, „Compression of amplified chirped optical pulses“, *Opt. Commun.* **56**, 219 (1985).
- [16] M. D. Perry und G. Mourou, „Terawatt to Petawatt Subpicosecond Lasers“, *Science* **264**, 917 (1994).
- [17] C. Spielmann und H. Zacharias, „Extrem harmonisch“, *Physik J.* **11**, 37 (2012).
- [18] F. Krausz und M. I. Stockman, „Attosecond metrology: from electron capture to future signal processing“, *Nat. Photonics* **8**, 205 (2014).
- [19] M. Wegener, *Extreme Nonlinear Optics* (Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2005).
- [20] A. Couairon, „Dynamics of femtosecond filamentation from saturation of self-focusing laser pulses“, *Phys. Rev. A* **68**, 015801 (2003).
- [21] E. Garmire, R. Y. Chiao und C. H. Townes, „Dynamics and characteristics of the self-trapping of intense light beams“, *Phys. Rev. Lett.* **16**, 347 (1966).

- [22] R. G. Brewer, J. R. Lifshitz et al., „Small-Scale Trapped Filaments in Intense Laser Beams“, *Phys. Rev.* **166**, 326 (1968).
- [23] A. Couairon und A. Mysyrowicz, „Femtosecond filamentation in transparent media“, *Phys. Rep.* **441**, 47 (2007).
- [24] A. Braun, G. Korn et al., „Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air“, *Opt. Lett.* **20**, 73 (1995).
- [25] S. L. Chin, T.-J. Wang et al., „Advances in intense femtosecond laser filamentation in air“, *Laser Phys.* **22**, 1 (2012).
- [26] W. Liu, J. F. Gravel et al., „Background reservoir: Its crucial role for long-distance propagation of femtosecond laser pulses in air“, *Appl. Phys. B* **80**, 857 (2005).
- [27] L. Bergé, S. Skupin et al., „Ultrashort filaments of light in weakly ionized, optically transparent media“, *Rep. Prog. Phys.* **70**, 1633 (2007).
- [28] V. Loriot, E. Hertz et al., „Measurement of high order Kerr refractive index of major air components“, *Opt. Express* **17**, 13429 (2009).
- [29] P. B  jot, J. Kasparian et al., „Higher-order kerr terms allow ionization-free filamentation in gases“, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 103903 (2010).
- [30] W. Ettoumi, P. B  jot et al., „Spectral dependence of purely-Kerr-driven filamentation in air and argon“, *Phys. Rev. A* **82**, 033826 (2010).
- [31] C. Br  e, A. Demircan et al., „Kramers-Kronig relations and high-order nonlinear susceptibilities“, *Phys. Rev. A* **85**, 33806 (2012).
- [32] P. Polynkin, M. Kolesik et al., „Experimental tests of the new paradigm for laser filamentation in gases“, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 153902 (2011).
- [33] O. Kosareva, J.-F. Daigle et al., „Arrest of self-focusing collapse in femtosecond air filaments: higher order Kerr or plasma defocusing?“, *Opt. Lett.* **36**, 1035 (2011).
- [34] E. A. Volkova, A. M. Popov und O. V. Tikhonova, „Polarisation response of a gas medium in the field of a high-intensity ultrashort laser pulse: high order Kerr nonlinearities or plasma electron component?“, *Quantum Electron.* **42**, 680 (2012).
- [35] A. Spott, A. Jaron-Becker und A. Becker, „Ab initio and perturbative calculations of the electric susceptibility of atomic hydrogen“, *Phys. Rev. A* **90**, 013426 (2014).
- [36] E. A. Volkova, A. M. Popov und O. V. Tikhonova, „Nonlinear polarization response of a gaseous medium in the regime of atom stabilization in a strong radiation field“, *J. Exp. Theor. Phys.* **116**, 372 (2013).
- [37] M. Richter, S. Patchkovskii et al., „The role of the Kramers-Henneberger atom in the higher-order Kerr effect“, *New J. Phys.* **15**, 083012 (2013).
- [38] E. Lorin, S. Chelkowski et al., „Maxwell-Schr  dinger-Plasma (MASP) model for laser-molecule interactions: Towards an understanding of filamentation with intense ultrashort pulses“, *Physica D* **241**, 1059 (2012).
- [39] T. C. Rensink, T. M. Antonsen et al., „Model for atomic dielectric response in strong, time-dependent laser fields“, *Phys. Rev. A* **89**, 033418 (2014).

- [40] E. Lorin, M. Lytova et al., „Development of nonperturbative nonlinear optics models including effects of high order nonlinearities and of free electron plasma: Maxwell–Schrödinger equations coupled with evolution equations for polarization effects, and the SFA-like nonlinear optics model“, *J. Phys. A* **48**, 105201 (2015).
- [41] M. Kolesik, J. M. Brown et al., „Metastable electronic states and nonlinear response for high-intensity optical pulses“, *Optica* **1**, 323 (2014).
- [42] G. Steinmeyer, „A review of ultrafast optics and optoelectronics“, *J. Opt. A* **5**, R1 (2003).
- [43] J. A. Armstrong, „Measurement of picosecond laser pulse widths“, *Appl. Phys. Lett.* **10**, 16 (1967).
- [44] C. Iaconis und I. A. Walmsley, „Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses“, *Opt. Lett.* **23**, 792 (1998).
- [45] R. Trebino und D. J. Kane, „Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses: frequency-resolved optical gating“, *J. Opt. Soc. Am. A* **10**, 1101 (1993).
- [46] M. Miranda, C. L. Arnold et al., „Characterization of broadband few-cycle laser pulses with the d-scan technique“, *Opt. Express* **20**, 18732 (2012).
- [47] S. K. Das, M. Bock et al., „First measurement of the non-instantaneous response time of a $\chi^{(3)}$ nonlinear optical effect“, *EPJ Web Conf.* **41**, 12005 (2013).
- [48] A. Couaïron, E. Brambilla et al., „Practitioner’s guide to laser pulse propagation models and simulation“, *Eur. Phys. J. Spec. Top.* **199**, 5 (2011).
- [49] J. Diels, W. Rudolph et al., *Ultrashort laser pulse phenomena* (Elsevier Science, 2006).
- [50] S. Skupin und L. Bergé, „Self-guiding of femtosecond light pulses in condensed media: Plasma generation versus chromatic dispersion“, *Physica D* **220**, 14 (2006).
- [51] M. Kolesik, J. V. Moloney und M. Mlejnek, „Unidirectional optical pulse propagation equation“, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 283902 (2002).
- [52] P. Kinsler und G. H. C. New, „Few-cycle pulse propagation“, *Phys. Rev. A* **67**, 023813 (2003).
- [53] T. Brabec und F. Krausz, „Nonlinear optical pulse propagation in the single-cycle regime“, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3282 (1997).
- [54] G. D. Montesinos und V. M. Pérez-García, „Numerical studies of stabilized Townes solitons“, *Math. Comput. Simul.* **69**, 447 (2005).
- [55] C. Joachain, N. Kylstra und R. Potvliege, *Atoms in intense laser fields* (Cambridge University Press, 2012).
- [56] F. Schwabl, *Quantenmechanik (QM I), Eine Einführung* (Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2013).
- [57] H. Muller und F. Kooiman, „Bunching and focusing of tunneling wave packets in enhancement of high-order above-threshold ionization“, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1207 (1998).
- [58] V. S. Yakovlev, M. Korbman und A. Scrinzi, „Dressed bound states for attosecond dynamics in strong laser fields“, *Chem. Phys.* **414**, 26 (2013).

- [59] K. Drese und M. Holthaus, „Floquet theory for short laser pulses“, *Eur. Phys. J. D* **5**, 119 (1999).
- [60] H. S. Friedrich, *Theoretical atomic physics* (Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2005).
- [61] H. J. Kull, *Laserphysik, Physikalische Grundlagen des Laserlichts und seiner Wechselwirkung mit Materie* (De Gruyter Oldenbourg, 2015).
- [62] R. M. Potvliege und R. Shakeshaft, „Multiphoton processes in an intense laser field: Harmonic generation and total ionization rates for atomic hydrogen“, *Phys. Rev. A* **40**, 3061 (1989).
- [63] J. N. Bardsley, A. Szoke und M. J. Comella, „Multiphoton ionisation from a short-range potential by short-pulse lasers“, *J. Phys. B* **21**, 3899 (1988).
- [64] V. Kapoor und D. Bauer, „Floquet analysis of real-time wave functions without solving the Floquet equation“, *Phys. Rev. A* **85**, 023407 (2012).
- [65] N. Moiseyev, „Quantum theory of resonances: calculating energies, widths and cross-sections by complex scaling“, *Phys. Rep.* **302**, 212 (1998).
- [66] S. Kruchinin, M. Korbman und V. S. Yakovlev, „Theory of strong-field injection and control of photocurrent in dielectrics and wide band gap semiconductors“, *Phys. Rev. B* **87**, 1 (2013).
- [67] M. Korbman, S. Y. Kruchinin und V. S. Yakovlev, „Quantum beats in the polarization response of a dielectric to intense few-cycle laser pulses“, *New J. Phys.* **15**, 013006 (2013).
- [68] S. Glutsch, „Nonresonant and resonant Zener tunneling“, *Phys. Rev. B* **69**, 235317 (2004).
- [69] K. S. Virk und J. E. Sipe, „Semiconductor optics in length gauge: A general numerical approach“, *Phys. Rev. B* **76**, 1 (2007).
- [70] W. Press, *Numerical recipes, The art of scientific computing* (Cambridge University Press, 2007).
- [71] G. Wilson, D. A. Aruliah et al., „Best practices for scientific computing“, *PLoS Biol.* **12**, e1001745 (2014).
- [72] K. Passig und J. Jander, *Weniger schlecht programmieren* (O'Reilly Verlag, 2013).
- [73] J. Javanainen, J. H. Eberly und Q. Su, „Numerical simulations of multiphoton ionization and above-threshold electron spectra“, *Phys. Rev. A* **38**, 3430 (1988).
- [74] H. Tal-Ezer, R. Kosloff und C. Cerjan, „Low-order polynomial approximation of propagators for the time-dependent Schrödinger equation“, *J. Comput. Phys.* **100**, 179 (1992).
- [75] J. L. Krause, K. J. Schafer und K. C. Kulander, „Calculation of photoemission from atoms subject to intense laser fields“, *Phys. Rev. A* **45**, 4998 (1992).
- [76] D. E. Manolopoulos, „Derivation and reflection properties of a transmission-free absorbing potential“, *J. Chem. Phys.* **117**, 9552 (2002).
- [77] F. He, C. Ruiz und A. Becker, „Absorbing boundaries in numerical solutions of the time-dependent Schrödinger equation on a grid using exterior complex scaling“, *Phys. Rev. A* **75**, 053407 (2007).

- [78] A. Scrinzi, „Infinite-range exterior complex scaling as a perfect absorber in time-dependent problems“, *Phys. Rev. A* **81**, 053845 (2010).
- [79] M. Heinen und H. J. Kull, „Radiation boundary conditions for the numerical solution of the three-dimensional time-dependent Schrödinger equation with a localized interaction“, *Phys. Rev. E* **79**, 1 (2009).
- [80] J. A. Fleck, J. R. Morris und M. D. Feit, „Time-dependent propagation of high energy laser beams through the atmosphere“, *Appl. Phys.* **10**, 129 (1976).
- [81] S. Chen, X. Gao et al., „Application of a numerical-basis-state method to strong-field excitation and ionization of hydrogen atoms“, *Phys. Rev. A* **86**, 1 (2012).
- [82] H. G. Muller, „An efficient propagation scheme for the time-dependent Schrödinger equation in the velocity gauge“, *Laser Phys.* **9**, 138 (1999).
- [83] L. Lapidus und G. Pinder, *Numerical solution of partial differential equations in science and engineering* (Wiley, 2011).
- [84] T. Tsang, M. a. Krumbügel et al., „Frequency-resolved optical-gating measurements of ultrashort pulses using surface third-harmonic generation“, *Opt. Lett.* **21**, 1381 (1996).
- [85] S. K. Das, C. Schwanke et al., „Highly efficient THG in TiO₂ nanolayers for third-order pulse characterization.“, *Opt. Express* **19**, 16985 (2011).
- [86] T. Paasch-Colberg, A. Schiffrin et al., „Solid-state light-phase detector“, *Nat. Photonics* **8**, 214 (2014).
- [87] M. T. Hassan, T. T. Luu et al., „Optical attosecond pulses and tracking the nonlinear response of bound electrons“, *Nature* **530**, 66 (2016).
- [88] J. K. Wahlstrand und H. M. Milchberg, „Effect of a plasma grating on pump-probe experiments near the ionization threshold in gases“, *Opt. Lett.* **36**, 3822 (2011).
- [89] H. Schwarz und N. Köckler, *Numerische Mathematik* (Vieweg+Teubner Verlag, 2011).
- [90] S. Gerlach, *Computerphysik* (Springer Spektrum, 2016).



NONINSTANTANEOUS POLARIZATION DYNAMICS
IN DIELECTRIC MEDIA

Noninstantaneous polarization dynamics in dielectric media

MICHAEL HOFMANN,^{1,†} JANNE HYYTI,^{2,3,†} SIMON BIRKHOLZ,³ MARTIN BOCK,³ SUSANTA K. DAS,^{3,4} RÜDIGER GRUNWALD,³ MATHIAS HOFFMANN,⁵ TAMAS NAGY,^{5,6} AYHAN DEMIRCAN,⁶ MARCO JUPÉ,⁷ DETLEV RISTAU,^{5,7} UWE MORGNER,^{5,7} CARSTEN BRÉE,¹ MICHAEL WOERNER,³ THOMAS ELSAESSER,³ AND GÜNTER STEINMEYER^{2,3,*}

¹Weierstrass Institute for Applied Analysis and Stochastics, Mohrenstraße 39, 10117 Berlin, Germany

²Optoelectronics Research Centre, Tampere University of Technology, Korkeakoulunkatu 3, 33720 Tampere, Finland

³Max-Born-Institut für Nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie, Max-Born-Straße 2a, 12489 Berlin, Germany

⁴Department of Physics, School of Applied Sciences, Campus 3, KIIT University, Bhubaneswar 751024, India

⁵Institut für Quantenoptik, Leibniz-Universität Hannover, Welfengarten 1, 30167 Hannover, Germany

⁶Laser-Laboratorium Göttingen e.V., Hans-Adolf-Krebs-Weg 1, 37077 Göttingen, Germany

⁷Laser Zentrum Hannover e.V., Hollerithallee 8, 30419 Hannover, Germany

*Corresponding author: steinmey@mbi-berlin.de

Received 6 October 2014; revised 6 January 2015; accepted 8 January 2015 (Doc. ID 224362); published 10 February 2015

Third-order optical nonlinearities play a vital role for the generation and characterization of ultrashort optical pulses. One particular characterization method is frequency-resolved optical gating, which can be based on a large variety of third-order nonlinear effects. Any of these variants presupposes an instantaneous temporal response, as it is expected off resonance. In this paper we show that resonant excitation of the third harmonic gives rise to surprisingly large decay times, which are on the order of the duration of the shortest oscillator pulses generated to date. To this end, we measured interferometric third-harmonic frequency-resolved optical gating traces in TiO₂ and SiO₂, corroborating polarization decay times up to 6.5 fs in TiO₂. This effect is among the fastest effects observed in ultrafast spectroscopy. Numerical solutions of the time-dependent Schrödinger equation are in excellent agreement with experimental observations. Our work (experiments and simulations) corroborates that a noninstantaneous polarization decay may appear in the presence of a 3-photon resonance. In turn, pulse generation and characterization in the ultraviolet may be severely affected by this previously unreported effect. © 2015 Optical Society of America

OCIS codes: (190.7110) Ultrafast nonlinear optics; (190.4720) Optical nonlinearities of condensed matter; (320.7100) Ultrafast measurements.

<http://dx.doi.org/10.1364/OPTICA.2.000151>

1. INTRODUCTION

Third-order optical nonlinearities are a ubiquitous effect in dielectric materials. Under nonresonant conditions outside absorption resonances, they stem from the interaction with valence electrons in the material. An oscillating electric field $\mathcal{E}(t)$ induces a dipole moment inside the material, which gives

rise to a polarization $P(t) = \epsilon_0 \chi \mathcal{E}(t)$, with the dielectric constant ϵ_0 and the susceptibility χ . In an amorphous medium and under nonresonant conditions, the susceptibility can be written as a series of odd orders of the electric field $P(t) = \epsilon_0 (\chi^{(1)} \mathcal{E}(t) + \chi^{(3)} \mathcal{E}^3(t) + \dots)$. Assuming an oscillating electric field $\mathcal{E}(t) = E_0 \exp(i\omega t)$ one therefore expects

Fourier components of $P(t)$ at the fundamental frequency ω and all odd harmonics thereof. Using a 780 nm driver pulse, for example, third-harmonic (TH) radiation appears in the ultraviolet at 260 nm. Apart from harmonic generation, the real part of the $\chi^{(3)}$ nonlinearity also gives rise to a self-effect for the fundamental component, namely self-refraction. This reactive nonlinearity results in a power-dependent phase shift at the driver wavelength. Self-phase modulation is the dominant nonlinear effect in optical fibers. In bulk media, self-refraction additionally induces a spatial lensing effect at high intensities, which is named self-focusing. Both self-phase modulation and self-focusing play a vital role in characterization [1–5] and generation methods [6,7] for ultrashort pulses. The pulse generation method of Kerr-lens mode-locking relies on the quasi-instantaneous action of the self-focusing mechanism and additive-pulse mode-locking on that of self-phase modulation. A femtosecond relaxation time of this nonlinearity would severely limit obtainable pulse durations [8,9] from such laser sources. Similarly, one expects incorrect results from any pulse characterization method if a persistence appears in the nonlinear response.

2. MEASUREMENTS AND RETRIEVAL PROCEDURE

In our work, we used an interferometric variant of TH frequency-resolved optical gating (FROG [2,3,10]); see Fig. 1. The input pulses from a Ti:sapphire laser (7.5 fs pulse duration, 780 nm center wavelength) are split into two beam paths, experience a relative delay, and are then collinearly recombined and focused into the $\chi^{(3)}$ material by an off-axis $f = 25$ mm parabolic mirror. Dispersion of the beam splitter setup and the

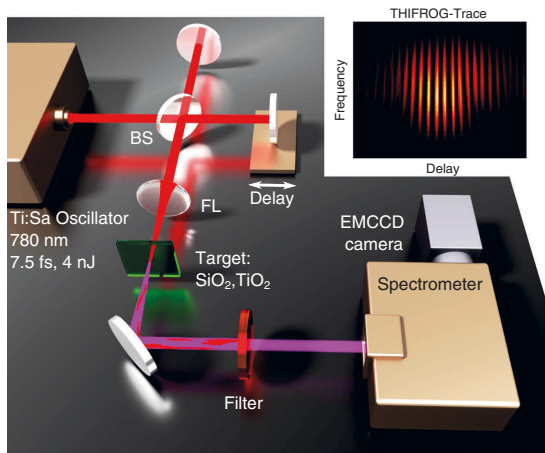


Fig. 1. Experimental setup. Few-cycle Ti:sapphire pulse is split into two replicas, one of which experiences an adjustable delay in a Michelson interferometer. After collinear recombination of the replicas, the pulses are focused onto a sample (SiO_2 , TiO_2) for the generation of the third harmonic. After suppressing fundamental light with a shortpass filter, the TH light is spectrally dispersed in a spectrometer. Light is detected with an intensified CCD camera. Resulting interferometric FROG traces exhibit interference patterns at the fundamental wavelength and its harmonics; see inset.

air paths is precompensated by chirped mirrors. The generated TH light is recollimated by a UV microscope objective. Fundamental light is rejected by two interference filters, which transmit a 40 nm bandwidth at 266 nm center wavelength. The light is then spectrally dispersed in a spectrograph equipped with an electron multiplier charge-coupled device (EMCCD). The experiments employed titania (TiO_2) thin-film samples that are deposited on silica (SiO_2) substrates. We exclusively used titania layers of about 180 nm (one-half wave) thickness, as these layers previously showed a maximum efficiency [10]. These samples were oriented with the titania side toward the concave mirror. Reference measurements were done in the same geometry, using the surface TH generation of silica substrates. Our measurements indicate the practical absence of a TH signal unless the beam waist is separated by less than the confocal parameter from either one of the surfaces [11]. This effect has been explained by destructive interference of the generated TH radiation when the focus is located in the bulk of the material [12]. The relative strength of the two TH peaks allows for verification of the correct orientation of the thin-film samples.

FROG techniques generally measure the spectrally resolved autocorrelation traces of the pulse under test [2], i.e., in this case the TH autocorrelation. The FROG method is fully self-referenced, and no well characterized external reference pulse is required. As interferometric FROG variants allow for a collinear beam path, tight focusing at high numerical apertures enables the use of nanojoule pulses with uncompressed durations of two to three optical cycles as they are directly available from mode-locked oscillators [8,9]. The measured interferometric third-harmonic interferometric (THI) FROG traces are of the form

$$I_{\text{THIFROG}}(\omega, \tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{+\infty} (\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}(t - \tau))^3 \exp(-i\omega t) dt \right|^2, \quad (1)$$

where τ is the delay between the two correlator arms, ω the angular optical frequency, $\mathcal{E}(t) = E(t) \exp(i\omega_0 t)$ is the rapidly oscillating electric field at carrier frequency ω_0 , and t is the time. Measured example traces are shown in Figs. 2(a) and 2(e). Using Fourier analysis, this measured FROG trace can be decomposed into three subtraces $I_{\text{THIFROG}}^{(n)}(\omega, \tau)$ that show sinusoidal variation with $n\omega\tau$, ($n = 1, \dots, 3$) and a fourth subtrace ($n = 0$) that does not rapidly vary with delay [13]. Examples for $n = 0$ and 1 are shown in Figs. 2(b) and 2(f), and 2(c) and 2(g), respectively. In principle, one can retrieve the complex-valued $E(t)$ from any of the three subtraces $I_{\text{THIFROG}}^{(n)}(\omega, \tau)$ ($n = 0 \dots 2$) whereas the trace for $n = 3$ contains only a spectral interferometry signal. Moreover, given the fairly weak signals, we could practically only use the subtraces for $n = 0$ and 1 for retrieval of $E(t)$. To this end, a specialized retrieval software was written that computes $I_{\text{THIFROG}}(\omega, \tau)$ via Eq. (1) for a given initial guess for $E(t)$, separates the relevant subtraces [13], and employs the Nelder–Mead optimization algorithm [14] to iteratively minimize the difference between measured and computed FROG trace. In this iterative

Research Article

Vol. 2, No. 2 / February 2015 / Optica 153

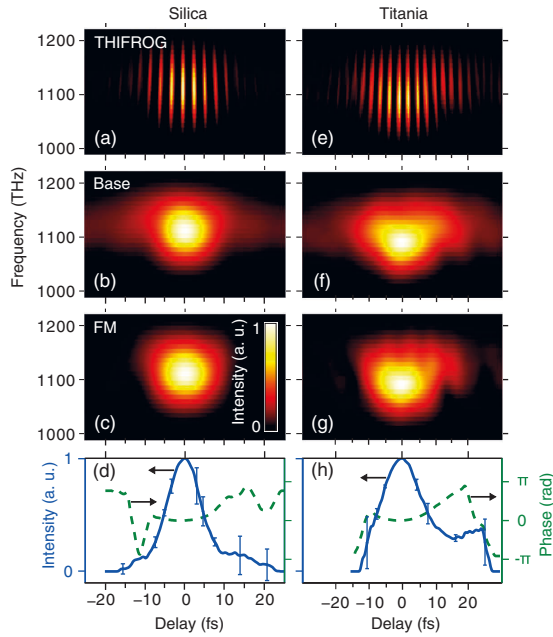


Fig. 2. Experimental results; (a)–(d) as measured with SiO₂; (e)–(h) as measured with TiO₂; (a and e) originally measured interferometric TH FROG traces. Experimental conditions are identical except for the nonlinear material; (b and f) resulting base bands obtained by Fourier filtering. Fringe frequencies higher than $0.5\lambda_0^{-1}$ are suppressed ($\lambda_0 = 780$ nm); (c and g) fundamental modulation side band at fringe frequency λ_0^{-1} . Frequencies below $0.5\lambda_0^{-1}$ and above $1.5\lambda_0^{-1}$ have been suppressed. Squared moduli of the rapidly oscillating fields are shown, i.e., intensities; (d and h) retrieved intensities (blue lines) and phases (dashed green lines). Error bars have been computed from the standard deviation of several independent retrievals.

reconstruction, the delay range encompassed 80 fs with a total of 50 points to represent $E(t)$. This corresponds to a temporal resolution of 1.6 fs, i.e., 70% of the optical cycle at 780 nm. Retrieval was seeded with assumption of an unchirped hyperbolic secant pulse shape, with a width that was matched to the autocorrelation width of the $I_{\text{THIFROG}}^{(0)}$ component. Using the redundancy in the THIFROG traces, a total of three independent retrieval attempts were made for each data set, employing either the $I_{\text{THIFROG}}^{(0)}$ or the $I_{\text{THIFROG}}^{(1)}$ component as well as a combination of the two. These independent retrievals were employed for an estimation of the robustness of the retrieved pulse shapes.

3. DISCUSSION OF EXPERIMENTAL RESULTS

We used the retrieval procedure on measured THIFROG data that was obtained with two different nonlinear optical $\chi^{(3)}$ materials, namely silica SiO₂ and titania TiO₂. Experimental results are displayed in Fig. 2. Even without pulse retrieval, one can immediately see that the titania-based FROG trace is significantly wider than the one measured in silica. This broadening effect becomes even more pronounced in a comparison of the reconstructed electric-field profiles in

Figs. 2(d) and 2(h). Despite an otherwise completely identical setup, a pulse duration of 10.1 fs (FWHM) is retrieved for silica, whereas the use of titania yields 15.7 fs. Deviations between the retrieved pulse durations and the input pulse duration of 7.5 fs may partially stem from imperfections in the dispersion compensation as well as from unavoidable spatial aberrations of the tight focusing geometry [15]. The redundant information in the THIFROG traces enabled the estimation of retrieval errors, as indicated by the error bars in Figs. 2(d) and 2(h). This analysis indicates meaningful reconstruction in the central ± 15 fs around zero delay whereas the trailing hump structure in Fig. 2(h) is probably a retrieval artifact. In the following analysis, we therefore only consider the meaningfully retrieved part of the intensity profiles.

For further analysis, we followed the deconvolution approach described in Ref. [16], iteratively reconstructing the response function $R(t)$ that minimizes the functional difference

$$\epsilon(t) = \left| I_{\text{TiO}_2}(t) - \int_0^\infty I_{\text{SiO}_2}(t-t')R(t')dt' \right|^2, \quad (2)$$

in a certain delay range. While Eq. (2) is based on intensity envelopes, the resulting decay times are readily converted to those of field envelopes by multiplying them with two. For Figs. 2(d) and 2(h), -10 fs $< t < 10$ fs was chosen. The intensities $I_X(t) = |\mathcal{E}_X(t)|^2$, $X = \text{SiO}_2, \text{TiO}_2$ are deduced from the interferometric FROG measurements at the silica and titania samples, respectively. The response function $R(t)$ is given as single-sided exponential $R(t) = \exp(-t/\tau_{\text{pol}})$, with τ_{pol} defining the polarization decay time. The deconvolution is computed in a forward fashion, starting with an initial guess for τ_{pol} . Numerically minimizing Eq. (2), we use again Nelder–Mead optimization for the deconvolution procedure. This deconvolution procedure yields $\tau_{\text{pol}} = 6.5$ fs for TiO₂ [Fig. 3]. This effect of a noninstantaneous response of titania was reproduced in a series of measurements on different samples that were manufactured by different deposition

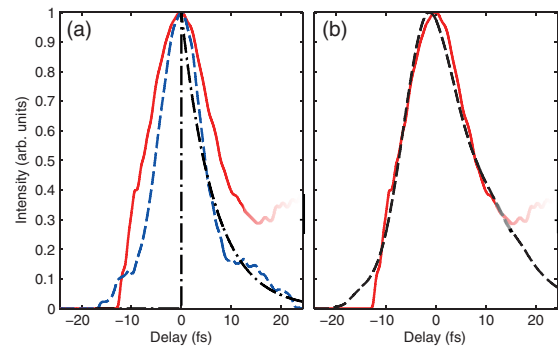


Fig. 3. Deconvolution analysis; (a) solid red curve, measured intensity profile using TiO₂; dashed blue curve, same using SiO₂; dashed-dotted black curve, single-sided exponential convolution kernel $R(t)$, cf. Eq. (2). $1/e$ polarization decay time is 6.5 fs; (b) solid red curve, same as in (a); dashed black curve, convolved silica trace $I_{\text{SiO}_2} * R$ yielding the best agreement with I_{TiO_2} in the range from -10 to 10 fs.

methods. In contrast, within experimental accuracy, we observe an instantaneous response when switching to samples with a band gap which is chosen such that 3-photon absorption cannot occur anymore. Moreover, we can also safely rule out Fabry–Perot effects from multiple reflections within the sample. The cavity lifetime of the thin film amounts to 2.6 fs, which is 2.5 times shorter than the measured τ_{pol} .

The peak intensity of the 780 nm pulses reaches values of the order of 0.1 TW/cm² on the samples. As a result, free electrons and holes are excited via 2- and 3-photon interband transitions in the titania sample. From the respective absorption coefficients reported in Ref. [17], one estimates a free-carrier density of several 10¹⁷ cm⁻³. Under such conditions, both nonlinear inter- and intraband polarizations occur and in general the related (imaginary or real) inter- and intraband currents represent source terms for generating electric fields at new frequencies. An analysis of this scenario requires in-depth calculations of the nonlinear response which are presented next.

4. TIME-DEPENDENT SCHRÖDINGER EQUATION

In order to gain insight into the nature of the resonant process we solve the 1D time-dependent Schrödinger equation (TDSE)

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_k(t) = \left(H_0 + \frac{e}{m_e} A(t) \right) \psi_k(t), \quad (3)$$

where H_0 is the Hamiltonian of the stationary problem, $A(t)$ is the vector potential of the laser field, and $\psi_k(t)$ is a superposition of one-electron Bloch waves with quasi-momentum k . e and m_e are electron charge and mass, respectively. In the Hamiltonian of the stationary problem we apply the single-active-electron approximation with the 1D pseudopotential [18]

$$U(r) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_1 (\tanh^2(c_2(r + na)) - 1) + c_3 (\tanh^4(c_2(r + na)) - 1). \quad (4)$$

As the initial condition, we assume fully occupied valence bands and solve the TDSE for one localized single electron in each valence band and every k -state independently [19]. The macroscopic current density is then computed as the sum over all k -states and all valence bands. It is important to understand that this model focuses on the electronic response and neglects any lattice contribution, i.e., phonons. In the following, we therefore restricted ourselves to a comparison with experimental data in the central range around zero delay.

For silica, we use the values from Ref. [18], i.e., $a = 5.4 \text{ \AA}$, $c_1 = 54.86 \text{ eV}$, $c_2 = 1.553 \text{ \AA}^{-1}$, and $c_3 = 0$, yielding a bandgap $E_g = 9 \text{ eV}$ and an effective mass $m^* = 0.4m_e$ in the lowest conduction band. For modeling the effective mass $m^* \approx m_e$ and band gap $E_g = 3.2 \text{ eV}$ of the anatase modification of TiO₂ [20], a simple $\tanh^2$ functional dependence in

Eq. (4) was found insufficient. Adding a $\tanh^4$ term and using $a = 9.51 \text{ \AA}$, $c_1 = c_3 = 31.31 \text{ eV}$, and $c_2 = 2.598 \text{ \AA}^{-1}$, we obtain a good match for the pseudopotential of titania, yet with a slightly smaller effective mass $m^* = 0.61m_e$ than experimentally reported. In the numerical simulations, a $\cos^4$ excitation pulse shape [19] with 6.5 fs FWHM was chosen to temporally localize the response. $\lambda_0 = 780 \text{ nm}$ (1.55 eV) was assumed as central excitation wavelength. It is important to note that solution of the TDSE models the response of a single atom. Propagation effects, e.g., reabsorption of the generated THG light, are not included.

Figure 4 shows the extracted nonlinear phase contribution $\arg[P^{(\omega_0)}(t)]$ as well as the TH polarization amplitude $|P^{(3\omega_0)}(t)|$ in TiO₂ for a range of intensities from 0.1 to 1 TW/cm². To extract the nonlinear phase, we carried out an additional calculation at a much smaller intensity of 10⁴ W/cm² to subtract a reference phase. Both the nonlinear phase contribution as well as the simulated THG response exhibit an increasing polarization decay constant with growing intensity, as confirmed by a deconvolution analysis [Fig. 4(c)]. The THG response shows relatively little variation ($\tau_{\text{pol}} = 3.2\text{--}6.4 \text{ fs}$) over the simulation range. Best agreement with experimental results is obtained for the highest intensities, which already lie above the expected damage threshold of TiO₂. This discrepancy may be attributed to a surface modification of the nonlinear response, which was not considered in

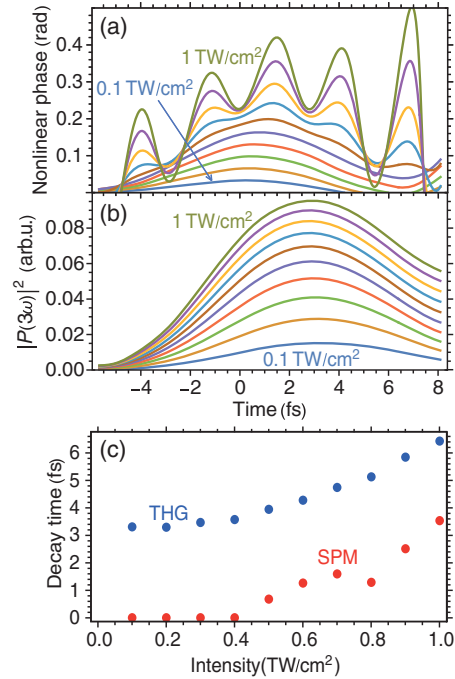


Fig. 4. Solutions of the TDSE for TiO₂; (a) nonlinear phase response of the polarization at the fundamental frequency ω_0 for intensities from 0.1 to 1 TW/cm² (step size 0.1 TW/cm²); (b) same for the modulus of the polarization at $3\omega_0$; (c) extracted polarization decay times τ_{pol} from (a) and (b) using the deconvolution approach.

Research Article

Vol. 2, No. 2 / February 2015 / Optica 155

our simulations. Moreover, the self-refraction response exhibits a significantly higher onset of noninstantaneous effects, which are accompanied by an oscillatory behavior. This results from a quantum beat between the populated first and second conduction bands, whose energy spacing (≈ 1 eV) matches the observed oscillation period of 2.8 fs. Lengthening of self-refraction response therefore appears to be related to population of the conduction bands via 3-photon absorption, similar as one would expect from the Kramers–Kronig relation [21,22]. It is important to understand that the Kramers–Kronig relation does not immediately couple the THG response and self-refraction, which explains the different dynamics. Nevertheless, very similar relaxation time constants appear for the two effects.

The TDSE was used to model interband transitions from the valence band into the first 13 conduction bands as well as intra-conduction band transitions. For an estimation of the prevalent mechanism, all intraband currents were summed up and compared to the total interband current [23,24], clearly indicating that the nonlinear response is dominated by nonlinear interband polarization whereas intraband contributions play a minor role; see Fig. 5(d). In titania, the intraband current amplitudes are typically 1 order of magnitude smaller than the interband contributions. Given the bandgap of 9 eV, the third harmonic of the 1.5 eV excitation is still off-resonant in silica. In this case, the polarization follows the rapidly oscillating fundamental field $\mathcal{E}(t)$ [Fig. 5(a)]. Polarization contributions at the third harmonic $\propto \mathcal{E}^3(t)$ are comparatively weak [Fig. 5(e)]. For titania with a bandgap of ≈ 3.2 eV, the third harmonic becomes resonant with the quantum mechanical dipole, cf. Fig. 5(c). This gives rise to an apparent build-up of an oscillation of P at the TH frequency [Fig. 5(a)]. The spectral overlap causes a continuation of the dipole oscillation for several cycles beyond the excitation pulse. Deconvolving the computed titania response with a single-sided exponential, we again determine a relaxation time constant $\tau_{\text{pol}} = 8$ fs [Fig. 5(e)], close to the measured values. Isolating the fundamental frequency contribution of the polarization and comparing its phase to the driver field, one can also extract the self-refraction part of the response. In this case one observes a qualitatively similar behavior as for the third harmonic. Quite generally, once there is a response in resonance with the quantum mechanical dipole, self-phase modulation and self-focusing will not immediately follow the envelope of the driver pulse anymore, but show a persistence of several femtoseconds beyond [Fig. 5(f)]. For a given bandgap, the effective mass in the pseudopotential plays a decisive role for the length of the observed relaxation time constant, i.e., the relaxation behavior on few-femtosecond time scales may be used as a local probe for the effective mass m^* of the valence electrons inside the material. Moreover, we repeated the simulations assuming hydrogen-like atomic potentials [25] and observed qualitatively the same behavior. In these simulations, we adjusted the ionization potential of the model atom to match the band gap of our material. Once there is spectral overlap between the third harmonic and the conduction band (or the continuum state in an atomic system), a prominent persistence of the nonlinear susceptibility is observed.

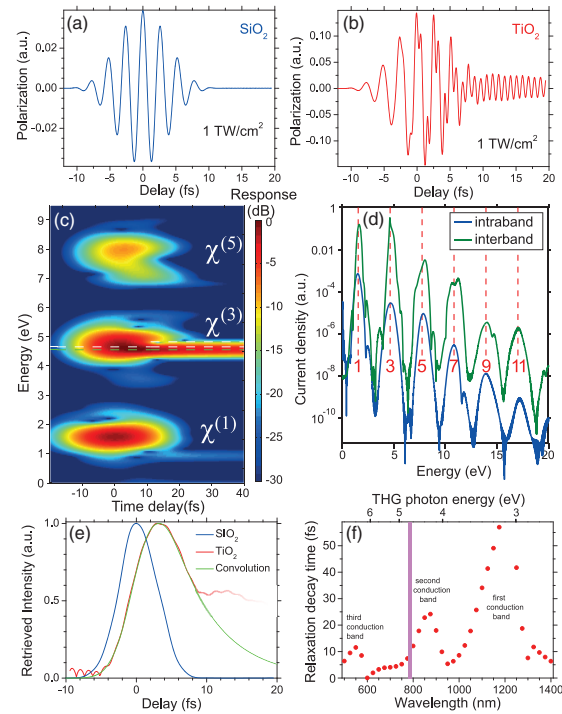


Fig. 5. Solutions of the TDSE; (a) computed polarization response for SiO_2 . Intensity $1 \text{ TW}/\text{cm}^2$; (b) same for TiO_2 ; (c) temporally gated spectrograms of the polarization for TiO_2 . Resonant behavior is clearly identified by a lasting response at a given frequency; (d) spectrally resolved interband (green curve) and intraband (blue curve) current densities [23,24]. Intraband currents mostly originate from the first and second conduction bands. Positions of fundamental and all odd harmonics are indicated by dashed red lines. Interband contributions to the observed nonlinearities clearly overrule intraband effects; (e) deconvolution analysis. Simulated intensity profile $|E_{\text{THG}}(t)|^2$ for use of SiO_2 (blue) is compared to TiO_2 (red). Convoluting the titania profile with a single-sided exponential with relaxation time constant $\tau_{\text{pol}} = 8$ fs yields a good approximation to the TiO_2 profile for $t = -10$ to $+10$ fs. (f) systematic scan of excitation wavelength with subsequent deconvolution analysis. Resulting τ_{pol} shows a strong reaction to an overlap of the third harmonic of the excitation wavelength with various conduction bands. Third harmonic of the excitation wavelength is in resonance with the second conduction band of TiO_2 . Pink band indicates the central excitation wavelength.

5. DISCUSSION

In principle, some of our findings can also be qualitatively understood in a semi-classical picture, as previously discussed for nano-plasmonic systems [16]. Driving a harmonic oscillator far off resonance, the forced oscillation will immediately disappear if the driver is switched off. On resonance, however, the forced oscillation will persist for several cycles, until the oscillating system dephases. In this scenario, the intrinsic single-sided exponential decay of the system gives rise to Lorentzian line shapes. Moreover, in a weakly anharmonic oscillator, there may be a build-up of a resonant oscillation if the system is driven at a suitable subharmonic. Quickly switching

off the driver, one then also observes a persistence of the resonant oscillation. Despite the intriguing accessibility of such models, however, semi-classical pictures fail to correctly predict the sharp transition between resonant and off-resonant excitation, which is only correctly modeled in the full quantum mechanical simulations.

Our findings have important implications for applications of nonlinear $\chi^{(3)}$ effects, in particular for short-pulse characterization techniques. Specifically, limitations arise when the third harmonic approaches the band gap of the nonlinear material. While this appears straightforward for TH generation, adverse effects also appear at the fundamental wavelength for self-refraction as shown in Fig. 4(a). The dynamics of this effect is obviously not identical to the observed noninstantaneity of the THG, but similar relaxation time constants of a few femtoseconds appear and the appearance of this effect is equally related to a 3-photon resonance with the band gap. This modified response could, in principle, limit Kerr-lens mode-locking, even though we are not aware of such lasers being operated above one-third of the bandgap [26–28]. More importantly, our findings impose limitations on $\chi^{(3)}$ -based pulse measurement techniques in the visible and ultraviolet range. Using sapphire or silica as the medium, limitations may appear below 600 nm. There is an increasing trend to employ near-resonant thin-film samples [10,29,30], as they provide substantially enhanced conversion efficiencies. This favorable behavior may come with a significant loss of temporal resolution, particularly for pulses in the few-cycle regime. Finally, even using the widest bandgap material LiF, sensible $\chi^{(3)}$ based characterization appears to be restricted to wavelengths above 320 nm.

6. CONCLUSIONS

In conclusion, we present a novel approach of using frequency-resolved optical gating as a tool to resolve the temporal response of nonlinear optical processes at a few-cycle time scale. This response shows a threshold-like dependence on the bandgap of the material. The reported polarization decay times of ≈ 7 fs belong to the fastest noninstantaneous effects that were ever reported at near-visible wavelengths. Our findings may have important effects in ultrafast optics, imposing the avoidance of resonant 3-photon effects for sensible characterization and passive mode-locking techniques in the few-cycle regime. Given that this issue is apparently not restricted to solid-state materials, there may also be consequences for attosecond pulse characterization techniques [31]. In a somewhat simplifying fashion, particular care appears advisable whenever odd harmonics become resonant with resonant transitions and if pulse durations are below 10 cycles of the carrier field. Considering that the shortest attosecond pulses to date [31] are approaching the single-cycle regime, there may be an incentive to prefer spectral-interferometry-based techniques over correlation techniques in this regime. Despite all the apparent possible limitations, our advanced method opens a new avenue for accessing fundamental parameters of a dielectric material by an optical probe technique.

FUNDING INFORMATION

Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) (BR 4654/1, GR 1782/12-2, MO 850/16, STE 762/9).

[†]Authors MH and JH contributed equally to this work.

REFERENCES

1. D. J. Kane and R. Trebino, "Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating," *IEEE J. Quantum Electron.* **29**, 571–579 (1993).
2. R. Trebino, *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses* (Kluwer, 2002).
3. T. Tsang, M. A. Krumbügel, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, and R. Trebino, "Frequency-resolved optical-gating measurements of ultrashort pulses using surface third-harmonic generation," *Opt. Lett.* **21**, 1381–1383 (1996).
4. D. Meshulach, Y. Barad, and Y. Silberberg, "Measurement of ultrashort optical pulses by third-harmonic generation," *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2122–2125 (1997).
5. A. Major, F. Yoshino, J. S. Aitchison, and P. W. E. Smith, "Wide spectral range third-order autocorrelator based on ultrafast nonresonant nonlinear refraction," *Opt. Lett.* **29**, 1945–1947 (2004).
6. E. P. Ippen, H. A. Haus, and L. Y. Liu, "Additive pulse mode locking," *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 1736–1745 (1989).
7. D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, "60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.* **16**, 42–44 (1991).
8. G. Steinmeyer, D. H. Sutter, L. Gallmann, N. Matuschek, and U. Keller, "Frontiers in ultrashort pulse generation: pushing the limits in linear and nonlinear optics," *Science* **286**, 1507–1512 (1999).
9. U. Morgner, F. X. Kärtner, S. H. Cho, Y. Chen, H. A. Haus, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, and T. Tschudi, "Sub-two-cycle pulses from a Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.* **24**, 411–413 (1999).
10. S. K. Das, C. Schwanke, A. Pfuch, W. Seeber, M. Bock, G. Steinmeyer, T. Elsaesser, and R. Grunwald, "Highly efficient THG in TiO₂ nanolayers for third-order pulse characterization," *Opt. Express* **19**, 16985–16995 (2011).
11. T. Y. F. Tsang, "Optical third-harmonic generation at interfaces," *Phys. Rev. A* **52**, 4116–4125 (1995).
12. Y. Barad, H. Eisenberg, M. Horowitz, and Y. Silberberg, "Nonlinear scanning laser microscopy by third harmonic generation," *Appl. Phys. Lett.* **70**, 922–924 (1997).
13. G. Stibenz and G. Steinmeyer, "Interferometric frequency-resolved optical gating," *Opt. Express* **13**, 2617–2626 (2005).
14. J. A. Nelder and R. Mead, "A simplex method for function minimization," *Computer J.* **7**, 308–313 (1965).
15. W. Amir, T. A. Planchon, C. G. Durfee, J. A. Squier, P. Gabolde, R. Trebino, and M. Müller, "Simultaneous visualization of spatial and chromatic aberrations by two-dimensional Fourier transform spectral interferometry," *Opt. Lett.* **31**, 2927–2929 (2006).
16. A. Anderson, K. S. Deryckx, X. G. Xu, G. Steinmeyer, and M. B. Raschke, "Few-femtosecond plasmon dephasing of a single metallic nanostructure from optical response function reconstruction by interferometric frequency resolved optical gating," *Nano Lett.* **10**, 2519–2524 (2010).
17. C. C. Evans, J. D. B. Bradley, E. A. Martí-Panameño, and E. Mazur, "Mixed two- and three-photon absorption in bulk rutile (TiO₂) around 800 nm," *Opt. Express* **20**, 3118–3128 (2012).
18. T. Paasch-Colberg, A. Schiffrin, N. Karpowicz, S. Kruchinin, Ö. Sağlam, S. Keiber, O. Razskazovskaya, S. Mühlbrandt, A. Alnaser, M. Kübel, V. Apalkov, D. Gerster, J. Reichert, T. Wittmann, J. V. Barth, M. I. Stockman, R. Ernstorfer, V. S. Yakovlev, R. Kienberger, and F. Krausz, "Solid-state light-phase detector," *Nature Photon.* **8**, 214–218 (2014).

Research Article

Vol. 2, No. 2 / February 2015 / Optica 157

19. M. Korbman, S. Y. Kruchinin, and V. S. Yakovlev, "Quantum beats in the polarization response of a dielectric to intense few-cycle laser pulses," *New J. Phys.* **15**, 013006 (2013).
20. H. Tang, K. Prasad, R. Sanjinès, P. E. Schmid, and F. Lévy, "Electrical and optical properties of TiO₂ anatase thin films," *J. Appl. Phys.* **75**, 2042–2047 (1994).
21. M. Sheik-Bahae, D. C. Hutchings, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, "Dispersion of bound electron nonlinear refraction in solids," *IEEE J. Quantum Electron.* **27**, 1296–1309 (1991).
22. B. Borchers, C. Brée, S. Birkholz, A. Demircan, and G. Steinmeyer, "Saturation of the all-optical Kerr effect in solids," *Opt. Lett.* **37**, 1541–1543 (2012).
23. V. Juvé, M. Holtz, F. Zamponi, M. Woerner, T. Elsaesser, and A. Borgschulte, "Field-driven dynamics of correlated electrons in LiH and NaBH₄ revealed by femtosecond X-ray diffraction," *Phys. Rev. Lett.* **111**, 217401 (2013).
24. C. Somma, K. Reimann, C. Flytzanis, T. Elsaesser, and M. Woerner, "High-field terahertz bulk photovoltaic effect in lithium niobate," *Phys. Rev. Lett.* **112**, 146602 (2014).
25. H. G. Muller, "An efficient propagation scheme for the time-dependent Schrödinger equation in the velocity gauge," *Laser Phys.* **9**, 138–148 (1999).
26. S. Uemura and K. Torizuka, "Generation of 12-fs pulses from a diode-pumped Kerr-lens mode-locked Cr:LiSAF laser," *Opt. Lett.* **24**, 780–782 (1999).
27. H. Zhao and A. Major, "Powerful 67 fs Kerr-lens mode-locked prismless Yb:KGW oscillator," *Opt. Express* **21**, 31846–31851 (2013).
28. N. Tolstik, E. Sorokin, and I. T. Sorokina, "Kerr-lens mode-locked Cr:ZnS laser," *Opt. Lett.* **38**, 299–301 (2013).
29. A. B. Djurišić and Y. H. Leung, "Optical properties of ZnO nanostructures," *Small* **2**, 944–961 (2006).
30. A. Chen, G. Yang, H. Long, F. Li, Y. Li, and P. Lu, "Nonlinear optical properties of laser deposited CuO thin films," *Thin Solid Films* **517**, 4277–4280 (2009).
31. M. Chini, K. Zhao, and Z. Chang, "The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses," *Nature Photon.* **8**, 178–186 (2014).

B

FEMTOSECOND FILAMENTATION BY INTENSITY
CLAMPING AT A FREEMAN RESONANCE

PHYSICAL REVIEW A **92**, 013813 (2015)**Femtosecond filamentation by intensity clamping at a Freeman resonance**Michael Hofmann^{1,2,*} and Carsten Brée^{1,3}¹*Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik, 10117 Berlin, Germany*²*Institut für Theoretische Physik, Technische Universität Berlin, Hardenbergstraße 36, D-10623 Berlin, Germany*³*Max-Born-Institut für Nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie, 12489 Berlin, Germany*

(Received 3 December 2014; published 8 July 2015)

We demonstrate that Freeman resonances have a strong impact on the nonlinear optical response in femtosecond filaments. These resonances decrease the transient refractive index within a narrow intensity window and strongly affect the filamentation dynamics. In particular, we demonstrate that the peak intensity of the filament can be clamped at these resonances, hinting at the existence of new regimes of filamentation with electron densities considerably lower than predicted by the standard model. This sheds further light on the phenomenon of filamentary intensity clamping and the nearly plasmaless filaments predicted by the controversial higher-order Kerr model.

DOI: [10.1103/PhysRevA.92.013813](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.92.013813)

PACS number(s): 42.65.Tg, 42.65.Jx, 42.68.Ay, 52.38.Hb

I. INTRODUCTION

Femtosecond laser filaments are narrow beams of intense laser light in ionizing media which maintain their beam waist over distances exceeding the linear diffraction length [1]. The high optical intensities in filaments lead to transient refractive index modifications, which according to the established standard model of filamentation stem from an interplay of the all-optical Kerr effect and free electrons generated by multiphoton and tunneling ionization processes. Self-guided filaments are then understood to result from a balance of Kerr self-focusing and plasma defocusing [2]. While the temporal evolution of a filamentary laser pulse is highly dynamic and subject to recurrent focusing and refocusing cycles [3], a temporally averaged model can be shown to admit spatial soliton solutions, which produces the illusion of a nondiffracting beam [4,5].

The standard model successfully fostered the theoretical understanding of various phenomena of nonlinear optics related to filamentation, like supercontinuum generation, pulse self-compression or terahertz generation [6–8]. However, it has recently been challenged by measurements of the cross-Kerr response in a pump-probe setup designed to detect the Kerr-induced birefringence [9]. This revealed strong deviations from the linear intensity dependence of the Kerr response, and led to the proposal of an extended model including higher-order terms in the intensity. Above a threshold intensity, these terms turn the Kerr response into a defocusing nonlinearity, leading to the prediction of plasmaless filaments [10]. The higher-order Kerr effect (HOKE) model has been heavily debated [11–15]. Nevertheless, it turned out that some basic assumptions of the standard model should be reconsidered. One of the major weaknesses of the standard model appears now to be the fact that it mixes perturbative and nonperturbative aspects of nonlinear optics in an inadmissible manner. While the nonlinear polarization density is treated perturbatively, the typical intensities in filaments exceed the validity range of perturbative multiphoton ionization models. Instead, in order to correctly describe ionization effects, some variant

of the nonperturbative Keldysh theory [16] is employed. Indeed, a detailed analysis of the breakdown of a perturbative treatment of the optical response in filaments has recently been published in Ref. [17]. Furthermore, the standard model assumes off-resonant excitation and neglects the dispersive character of the $\chi^{(3)}$ susceptibility, an issue recently resolved in Ref. [18] for intensities not exceeding 10 TW/cm^2 . Another, even more fundamental, drawback is due to the fact that the standard model inherits the separate treatment of bound-state and continuum response from the macroscopic Maxwell's equation. However, it was shown that, in the presence of a strong laser field, gauge variance renders the distinction between bound and continuum electrons ambiguous [13,14], and it is therefore impossible to distinguish the relative contributions of real and virtual transitions between field-free atomic states. Instead, bound states of free electrons, so-called Kramers-Henneberger states, were proposed to contribute to the HOKE [19]. A further contributing mechanism was exposed in Refs. [20,21], showing that multiphoton resonances may transfer population into Rydberg states, where it is trapped due to the interference stabilization mechanism [22]. Thus, the large negative polarizability of the populated Rydberg states contributes to the observed saturation of the optical response.

In the current paper, we supplement these results by demonstrating that for sufficiently long pulses, the optical response is dominated by multiphoton resonances between field-dressed atomic states. In contrast to the field-free states, the contribution of field-dressed states to the susceptibility can be unambiguously defined by means of a Floquet analysis. These so-called Freeman resonances [23], whose impact on the optical response was previously indicated in Ref. [19], repetitively occur in the vicinity of channel closures when the ac Stark shift of atomic levels is of the order of a photon energy, which is the case for intensities exceeding some tens of TW/cm^2 . Here we note that for ultrashort, few-cycle pulses, Rydberg states become physically insignificant, and in consequence Freeman resonances are smeared out. Instead, as shown in Ref. [24], for pulses significantly shorter than 100 fs, channel closures become predominant and contribute to the negative optical susceptibility [14]. Thus, we restrict our analysis to pulse durations of the order of 100 fs and show that Freeman resonances contribute to the saturation of

*hofmann@wias-berlin.de

MICHAEL HOFMANN AND CARSTEN BRÉE

PHYSICAL REVIEW A **92**, 013813 (2015)

the transient refractive index and may lead to a sign reversal and an order-of-magnitude variation of the transient refractive index in a narrow intensity window. This demonstrates the nonperturbative and noninstantaneous nature of the optical nonlinearity. By analyzing the impact of Freeman resonances on filamentary propagation, we show in the second part of the paper that they support intensity clamping and give rise to unexpected filamentation regimes.

II. FLOQUET ANALYSIS

In order to analyze the Floquet states of atomic hydrogen dressed by a strong pump pulse, we solve the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) for a commonly used one-dimensional (1D) model atom with soft-core potential [25]

$$i\partial_t\psi = -\frac{1}{2}\partial_z^2\psi - \frac{1}{\sqrt{z^2 + \alpha^2}}\psi + E(t)z\psi, \quad (1)$$

where $\alpha = \sqrt{2}$ was chosen to match hydrogen's ionization potential $I_p = 13.6 \text{ eV} \equiv 0.5 \text{ a.u.}$ The model atom is subject to a flat-top pump pulse of variable intensity I and carrier wavelength $\lambda = 800 \text{ nm}$. The field is ramped by a four-cycle $\cos^2$ envelope in the leading and trailing edge with a constant amplitude of 160 cycles in between. The Floquet quasienergies are then derived from the real-time wave function ψ using the method of Ref. [26]. Our results for intensities up to 40 TW/cm^2 are shown in Fig. 1(a). The prominent lines originating at $\omega = -I_p + N\omega_0$ correspond to the N -photon-dressed ground state (here $N = 8, 9$, and 10), where $\omega_0 = 1.55 \text{ eV} \equiv 0.057 \text{ a.u.}$ With increasing intensity, the ground-state energy decreases only slightly, while the quasienergies of the dressed Rydberg states are ac-Stark shifted by the ponderomotive potential $U_p = E^2/(4\omega_0^2)$. This is visualized by the dash-dotted white line, which shows the ponderomotively upshifted continuum limit. The dressed Rydberg states eventually cross the $N = 9$ dressed ground state. Since the involved dressed states stem from different Floquet blocks, the crossings facilitate multiphoton transitions into the continuum known as Freeman resonances [23]. Generally, level crossings between dressed Rydberg states and the dressed ground state involving K photons occur as the intensity is increased beyond a K -photon channel closure defined by $K\omega_0 = I_p + U_p + \Delta E_g$, where I_p is the field-free ionization potential of the atom and ΔE_g is the decrease of the dressed ground state [27]. Here, these crossings arise just after the nine- and ten-photon channel closures indicated by the solid vertical lines, leading to nine- and ten-photon transitions. Freeman resonances lead to an enhancement of the ionization rate and manifest themselves as sharp peaks in the intensity dependence of the ionization probability. Thus, we expect a higher ionization rate at intensities where a level crossing in the Floquet spectrum is observed. To confirm this, we plot in Fig. 1(b) the electron density leaving a spatial range of 200 a.u. versus pump intensity. Indeed, this exposes sharp peaks in the electron density at 15 TW/cm^2 and higher corresponding to the identified Freeman resonances. In the original work [23], these resonances were observed in photoelectron spectra of ionized atoms subject to intense laser fields, and in Ref. [27], their impact on the ionization rate was discussed, revealing

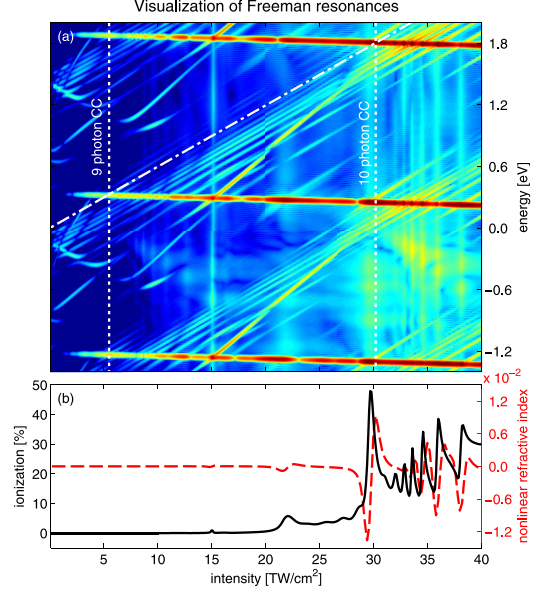


FIG. 1. (Color online) (a) Floquet spectrum versus intensity. The continuum threshold (dash-dotted line) and the quasienergy of the Rydberg states are upshifted by the ponderomotive potential U_p . Dashed lines mark channel closures (CCs). Level crossings between quasienergy levels of the ground and Rydberg states indicate occurrences of Freeman resonances, causing sharp peaks in the ionization probability [(b), black solid line] due to resonance enhancement. At coinciding intensities, resonances are visible in the nonlinear refractive index (red dashed line).

sharp peaks due to resonance enhanced multiphoton ionization (REMPI). However, in the context of filament propagation, it is equally important to analyze the impact of Freeman resonances on the (transient) refractive index of the dressed atom, which we present in the next section.

III. CROSS-INDUCED REFRACTIVE INDEX

We expect the Freeman resonances to cause a nonperturbative behavior in the cross-induced refractive index, i.e., the refractive index of the pump-dressed hydrogen atom experienced by a probe pulse. For further analysis, we consider a numerical pump-probe experiment, where the model atom is now subject to a total electric field $E(t) = E_{\text{pu}}(t) + E_{\text{pr}}(t)$ with the strong pump pulse E_{pu} and an additional weak probe pulse E_{pr} of the same frequency. The optical response of the dressed atom is derived from the differential dipole response [28]

$$\delta P[E_{\text{pr}}](t) = P[E_{\text{pu}} + E_{\text{pr}}](t) - P[E_{\text{pu}}](t), \quad (2)$$

where

$$P[E](t) = -\rho_0 q_e \langle \psi(t) | z | \psi(t) \rangle \quad (3)$$

is the polarization density, ρ_0 the atomic density, and q_e the electron charge. The cross-induced refractive index is

FEMTOSECOND FILAMENTATION BY INTENSITY ...

PHYSICAL REVIEW A **92**, 013813 (2015)

then obtained by calculating the polarization response $\delta P(\omega_0)$ at the probe frequency. In the considered case of degenerate pump and probe frequencies, however, care must be taken since negative frequencies in the probe field may add spurious contributions to $\delta P(\omega_0)$ due to multiwave mixing. To consider only positive frequencies, the real probe field E_{pr} is therefore replaced with the complex analytic signal $\mathcal{E}_{\text{pr}} = E_{\text{pr}} + i\mathcal{H}(E_{\text{pr}})$, where $\mathcal{H}$ is the Hilbert transform. By solving the TDSE (1) separately for the real and complex parts of $\mathcal{E}_{\text{pr}}$, the differential response δP to the complex probe field can be evaluated according to

$$\delta P[\mathcal{E}_{\text{pr}}](t) = \delta P[\text{Re } \mathcal{E}_{\text{pr}}](t) + i \delta P[\text{Im } \mathcal{E}_{\text{pr}}](t). \quad (4)$$

The intensity-dependent susceptibility then reads as

$$\chi(I) = \frac{\delta \hat{P}(I, \omega_0)}{\epsilon_0 \hat{E}_{\text{pr}}(\omega_0)}, \quad (5)$$

where $\hat{X}$ denotes the Fourier transform of X , I is the pump intensity, and ω_0 denotes the carrier frequency of pump and probe. The refractive index change is then obtained from

$$\Delta n(I) = \sqrt{1 + \text{Re } \chi(I)} - n_0, \quad (6)$$

where n_0 is the field-free refractive index.

Here, we employ for the pump a 40-cycle flat-top pulse with variable intensity and for the probe a 124-cycle flat-top pulse with a peak intensity of $I_{\text{pr}} = 1 \text{ W/cm}^2$. The red dashed line in Fig. 1(c) shows the cross-induced refractive index change, evaluated at the carrier frequency ω_0 . While Δn increases linearly for intensities below 10 TW/cm^2 (not visible on the chosen scale), we observe pronounced resonances which clearly coincide with the REMPI peaks observed in the ionization rate (black line). Especially after the ten-photon channel closure around 30 TW/cm^2 , Δn varies by orders of magnitude, leading us to suspect that Freeman resonances dominate the optical response in this regime.

In the following, we proceed to analyze the transient behavior of the resonances as it crucially determines the pulse dynamics in femtosecond filaments due to the interplay of the instantaneous Kerr and the cumulative plasma response. Similarly, we expect a noninstantaneous buildup of the Freeman resonance since we employ pulses with a finite ramp-up time. To analyze the transient character of the refractive index of the field-dressed atom, we employ the analog of Eq. (5) using a short-time Fourier transform with a Gaussian window of 20 fs duration [full width at half maximum (FWHM)] centered at $t = \tau$, which yields the instantaneous susceptibility $\chi(\tau)$ and refractive index change $\Delta n(\tau)$. For weak pump intensities smaller than 10 TW/cm^2 , Fig. 2(a) shows that $\Delta n(\tau)$ follows the intensity envelope of the pump pulse, in accordance with the Kerr model of the optical response based on an instantaneous $\chi^{(3)}$ nonlinearity. As our grid is sufficiently large (6000 a.u. radius), we capture the full plasma contribution to the refractive index, which is evident from the constant negative $\Delta n(\tau)$ in the wake of the 12 TW/cm^2 pulse. However, at this intensity, the decrease in $\Delta n(\tau)$ during the pulse is much larger: a first evidence of deviations from the standard model. In the vicinity of 15 TW/cm^2 as shown in Fig. 2(b), these deviations are dramatic and indicate the breakdown of a perturbative, instantaneous description of the nonlinearity. In

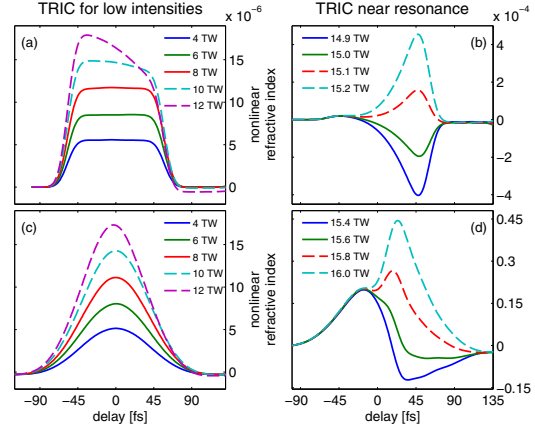


FIG. 2. (Color online) Transient refractive index change (TRIC) induced by an 800 nm, 40-cycle flat-top pump pulse (a) for low intensities and (b) in the vicinity of the first prominent Freeman resonance at 15 TW/cm^2 . (c) and (d) As above, but for a $90 \text{ fs } \cos^2$ pulse. The resonance and hence the refractive index saturation are still clearly visible.

fact, in the trailing part of the pump in Fig. 2(b), $\Delta n(\tau)$ exhibits a resonance pattern, with pronounced negative response (solid lines) below and positive response (dashed lines) above 15.05 TW/cm^2 . The sharpness of the observed resonances may also be attributed to the employed flat-top pulse, enabling the field-free eigenstates to adiabatically adapt to field-dressed eigenstates. However, experimental femtosecond pulses usually exhibit a variable intensity envelope. We therefore repeat our calculations for a pulse with $\cos^2$ shape, where the pulse duration of approximately 90 fs FWHM (96 cycles total) matches that of the original HOKE experiment [9]. Figures 2(c) and 2(d) depict the transient refractive index in the low-intensity regime and in the vicinity of the resonance at 15 TW/cm^2 . Again, the pulse envelope is reproduced for low intensities, whereas the resonance is smeared out due to the nonconstant intensity envelope. Nevertheless, we qualitatively observe the same behavior as for the flat-top pump. This is confirmed by the ionization probability and the nontransient refractive index according to Eq. (5), which are shown in Fig. 3, analogously to Fig. 1(b). Although the REMPI peaks appear at a reduced magnitude and are significantly broadened, they are still discernible and leave a clear signature in the intensity-dependent refractive index.

IV. BEAM PROPAGATION

These results raise the probing question whether the observed resonances have a notable influence on filament propagation. To this purpose, we analyze the self-induced nonlinear refractive index [instead of the cross-Kerr response of Eq. (5)], which we obtain from

$$\chi(\omega_0) = \frac{\hat{P}[E_{\text{pu}}](\omega_0)}{\epsilon_0 \hat{E}_{\text{pu}}(\omega_0)}. \quad (7)$$

MICHAEL HOFMANN AND CARSTEN BRÉE

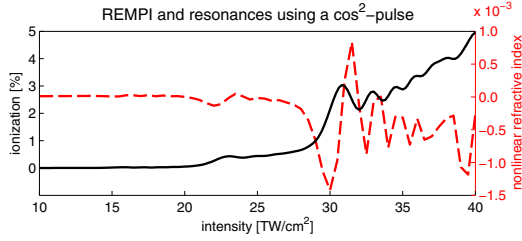
PHYSICAL REVIEW A **92**, 013813 (2015)

FIG. 3. (Color online) Influence of Freeman resonance on the ionization probability (black solid line) and nonlinear refractive index (red dashed line) for a 90 fs $\cos^2$ pulse, analogously to Fig. 1(b). Peaks and resonances are broadened due to the nonconstant intensity envelope.

For the 1D atomic hydrogen model, the resulting intensity-dependent refractive index $\Delta n(I)$ is shown as the dotted line in Fig. 4(a). In the low-intensity regime, it increases linearly with a slope $n_2 = 6.7 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{TW}$. The refractive index exhibits deviations from the linear behavior beyond 15 TW/cm² due to Freeman resonances. However, they appear less pronounced in the self-induced refractive index $\Delta n(I)$ than in its cross-induced counterpart $\Delta n^X(I)$. This is explained by the relation $n^X(I) = n(I) + I dn/dI$, which generalizes the corresponding relation for the higher-order Kerr coefficients, $n_{2j}^X = (j+1)n_{2j}$ [29]. Nevertheless, the global saturation and inversion behavior of $\Delta n(I)$ in the vicinity of 22 TW/cm² coincides with the Freeman resonance which is located in the same intensity interval (cf. Fig. 3).

In order to increase the explanatory power of our approach, we extend our analysis to atomic argon. Employing the single-active-electron approximation in an effective potential [30], we solve the 3D TDSE coupled to a linearly polarized $\cos^2$ laser pulse with a FWHM duration of 200 fs. The intensity-dependent refractive index of argon is shown as the solid line in Fig. 4(a). We deduce a slope $n_2 = 1.06 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{TW}$ in the low-intensity regime, in excellent agreement with the experimental value [31], $n_2 = 0.98 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{TW}$. Above the 12-photon channel closure at 47 TW/cm², transient resonances locally decrease the refractive index. The inversion intensity for which $\Delta n(I)$ changes its sign amounts to 71.5 TW/cm², and a further transient resonance shows up slightly above the 13-photon channel closure at 73.6 TW/cm². Interestingly, the global behavior of the intensity-dependent refractive index derived from the TDSE calculations for argon conforms with the standard model, which predicts a nonlinear index $\Delta n(I) = n_2 I - \rho/(2\rho_c)$. Here, we employ the measured value for n_2 according to [31]. The electron density generated by the 200 fs $\cos^2$ pulse is denoted by ρ and calculated according to the strong-field ionization rate of Ref. [32], and ρ_c is the critical plasma density. The resulting refractive index is shown as the dashed black line in Fig. 4(a). The inversion intensity according to the standard model is 68.3 TW/cm², which is only slightly below the one derived from our TDSE calculations. However, while the channel closures appear as local cusps in the standard model curve, we note the absence of transient resonances since the

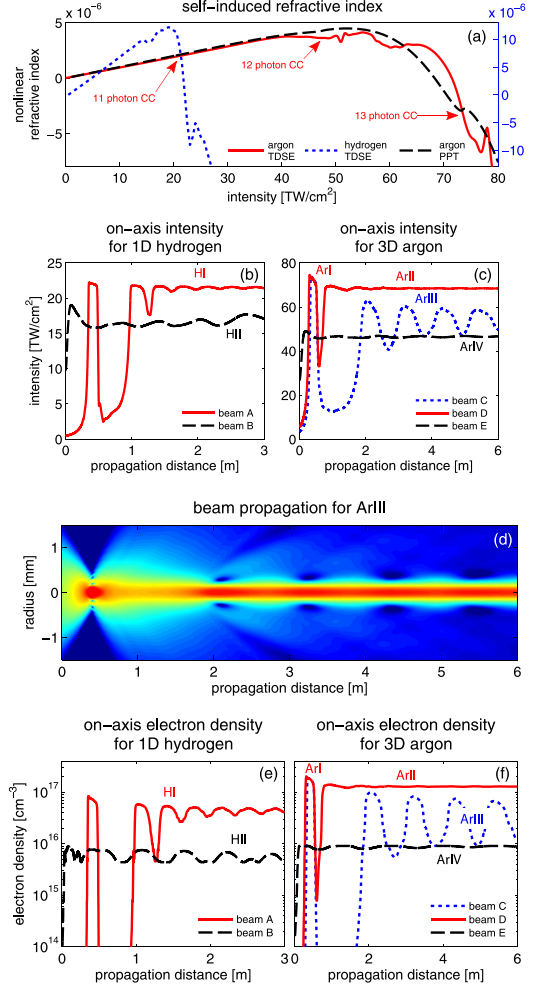


FIG. 4. (Color online) (a) Nonlinear refractive index $\Delta n(I)$ of hydrogen (blue dotted line) and argon (red solid line) compared to $\Delta n_{\text{std}}(I)$ according to the standard model (black dashed line). Arrows indicate channel closures (CCs) in argon. (b) and (c) On-axis intensity versus propagation distance in hydrogen and argon, respectively, with initial beam parameters given in Table I. (d) Evolution of the transverse beam profile for the regime Ar III. (e) and (f) On-axis electron density proving the existence of plasma-reduced filaments.

employed strong-field ionization rate neglects excited bound states.

A time-averaged model equation for filamentary propagation then reads [4]

$$\partial_z \mathcal{E} = \frac{i}{2k_0} \Delta_{\perp} \mathcal{E} + i \frac{\omega_0}{c} \Delta n(I) \mathcal{E}, \quad (8)$$

where $\mathcal{E}$ is the complex electric field envelope, normalized as $I = |\mathcal{E}|^2$. The carrier frequency is denoted as ω_0 , n_0 is the

FEMTOSECOND FILAMENTATION BY INTENSITY ...

PHYSICAL REVIEW A **92**, 013813 (2015)

TABLE I. Initial data for Gaussian beam propagation and filamentation regimes explored.

Beam	w_0 (mm)	I_0 (TW/cm ²)	P/P_{cr}	f (cm)	Regime
A	1	0.46	3	50	H I
B	0.12	9.8	0.92	∞	H II
C	1	3.25	3	50	Ar I, Ar III
D	1	5.4	5	50	Ar I, Ar II
E	0.2	26.8	1	∞	Ar IV

field-free refractive index, $k_0 = n_0\omega_0/c$ is the wave number at the carrier frequency, and $\Delta_\perp = \frac{1}{r}\partial_r r\partial_r$ is the transverse part of the Laplace operator, assuming cylindrical symmetry of the beam. Depending on the chosen initial conditions, the beam explores different filamentation regimes; see Table I, which compiles the beam waist w_0 , the initial peak intensity I_0 , the ratio P/P_{cr} , where $P_{cr} = 11.69\lambda^2/(8\pi^2 n_0 n_2)$ is the optical power of the so called Townes soliton (which defines the collapse threshold for Kerr self-focusing), the focal length f , and the explored filamentation regime for the respective beam. These regimes are distinguished by their respective filament peak intensity and peak electron density, as shown by the evolution of on-axis intensity and electron density in Figs. 4(b) to 4(f). In atomic hydrogen, we identify the plasma-dominated filamentation regime H I, with a peak electron density of $4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Remarkably, the regime H II corresponds to subcritical filamentation at the nine-photon Freeman resonance in the vicinity of 15 TW/cm^2 [cf. the dotted line in Fig. 4(a)]. Here, the electron density amounts to $\rho = 6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, nearly an order of magnitude smaller than in H I. In argon, we identify the plasma-dominated regimes Ar I and Ar II, with electron densities of 2 and $1.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, respectively. Moreover, Ar III corresponds to filamentation at a Freeman resonance above the 12-photon channel closure, with a reduced electron density of $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. For Ar III, the evolution of the radial beam profile versus propagation distance is shown in Fig. 4(d). This reveals that the beam sheds radiation into its spatial surroundings upon converging to a spatial soliton solution [5]. In addition, we again observe subcritical filamentation (Ar IV) with further reduced electron density $\rho = 9.5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

For a more rigorous consolidation of our results, we analyze the spatial optical solitons observed in the numerics, which allows us to draw important conclusions on filamentary intensity clamping. The notion of intensity clamping describes the fact that, above a certain power threshold, the intensity in the filament cannot be further increased by increasing the input optical power. In the following, we therefore analyze both, the linear stability of the localized solutions to Eq. (8), and the relation between their optical power and peak on-axis intensity. Stationary solutions are of the form $\mathcal{E}(r, z) = e^{i\beta z} \phi_\beta(r)$. We insert this ansatz into Eq. (8) and identify the nodeless, localized solutions by solving the resulting second-order nonlinear differential equation for different initial conditions for $\mathcal{E}(0)$, but fixed $\mathcal{E}'(0) = 0$, since we restrict ourselves to solutions which are smoothly differentiable at the origin. For the nonlinear refractive index of the 1D atomic hydrogen model, the resulting soliton optical power $P(\beta) = 2\pi \int r dr |\phi_\beta(r)|^2$

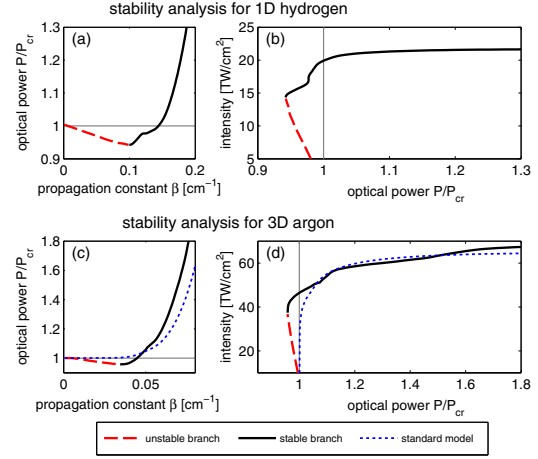


FIG. 5. (Color online) (a) and (c) Stable (solid black) and unstable (red dashed) soliton solutions for atomic hydrogen and argon, respectively, according to the TDSE results. Subcritical solitons occur for $P < P_{cr}$, i.e., below the thin gray line. (b) and (d) Corresponding soliton peak intensity versus soliton optical power. A local saturation in the vicinity of the Freeman resonance at 15 TW/cm^2 (hydrogen) and 50 TW/cm^2 (argon) is discernible. Blue dotted lines in (c) and (d) denote results for the standard model.

is shown as a function of the propagation constant β in Fig. 5(a). The solution exhibits two branches distinguished by the sign of their slope. According to the Vakhitov-Kolokolov stability criterion for linear stability, localized solutions with propagation constants β such that $\partial P/\partial \beta < 0$ are unstable [33]. In Fig. 5, these unstable branches are depicted by the red dashed lines, while the stable branches are shown as solid lines. Indeed, Fig. 5(a) shows that subcritical filamentation in the vicinity of $\beta = 0.1 \text{ cm}^{-1}$ is possible, i.e., stable, subcritical solitons exist in this regime. Inspecting Fig. 5(b), which shows soliton peak intensity $I(P)$ versus optical power P , we find that subcritical solitons occur in the vicinity of the Freeman resonance at 15 TW/cm^2 , which nicely confirms our direct numerical simulations. Furthermore, $I(P)$ locally saturates at that Freeman resonance, and we infer a global saturation intensity of 22 TW/cm^2 . Comparable results are derived for argon [see Figs. 5(c) and 5(d)], for which we additionally analyzed the spectrum of localized solutions for a nonlinear refractive index governed by the standard model (blue dotted lines). First, we again confirm the possibility of subcritical spatial solitons in Fig. 5(c). In contrast, $P_{std}(\beta)$ rises monotonically and does not allow for subcritical localized solutions. Analyzing the stable branch in Fig. 5(d), we find that $I(P)$, as in the hydrogen case, locally saturates in the vicinity of the Freeman resonances at 50 and 60 TW/cm^2 , whereas $I_{std}(P)$ rises sharply and then quickly saturates at $I = 68 \text{ TW/cm}^2$. Although, strictly speaking, intensity clamping can only be defined globally as described above, our results demonstrate that the local saturation and the weak power dependence of $I(P)$ in the vicinity of a Freeman resonance may be regarded as intensity clamping in a local, intermediate regime which favors

subcritical filamentation and filamentation at intermediate intensities, and occurs for pulse duration of the order of 100 fs.

V. CONCLUSION

In conclusion, we found that Freeman resonances strongly impact the optical response. Since they are closely related to channel closures, this sheds further light on the results of Ref. [14], which made channel closures accountable for the HOKE. Our results imply the existence of additional filamentation regimes due to intensity clamping at a Freeman resonance, especially for longer pulses of some 100 fs duration. This is in accordance with a recent experimental result which demonstrated that for 200 fs pulses undergoing filamentation a postfilament regime with a significantly reduced electron density emerges [34]. However, while in previous work, hypothetical filaments with reduced plasma density were attributed to the HOKE, our research reveals a completely different underlying mechanism closely linked to subcritical intensity clamping [35]. Moreover, the presence of transient resonances implies that a HOKE-like phenomenological description of the refractive index in terms of an instantaneous power series in I is inadequate, at least for the pulse durations considered here. Finally, our results shed an interesting perspective on self-

compression in hollow fibers, since the physical mechanisms of nonlinear pulse reshaping within the latter are basically the same as those in filaments. In gas-filled hollow fibers, the ionization-induced rapid variation of the refractive index leads to a significant spectral blueshift and a spatiotemporal reshaping of the pulse [36,37]. Therefore, we expect that the large gradient of the nonlinear refractive index close to a Freeman resonance can be beneficially exploited for ionization-induced pulse compression under the condition of sufficiently long input pulse durations. Regarding future research, we note that the impact of Freeman resonances depends sensitively on the temporal intensity envelope of the pump, which exhibits a pronounced dynamics upon filamentary propagation [3]. For an exact description, it is therefore inevitable to replace our time-averaged model Eq. (8) with a filamentation model derived from first principles.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank Matthias Wolfrum, Oleh Omel'chenko, and Günter Steinmeyer for valuable discussions. Financial support by the Deutsche Forschungsgemeinschaft, Grant No. BR 4654/1-1, is gratefully acknowledged.

- [1] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou, Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air, *Opt. Lett.* **20**, 73 (1995).
- [2] A. Couairon and L. Bergé, Modeling the filamentation of ultra-short pulses in ionizing media, *Phys. Plasmas* **7**, 193 (2000).
- [3] M. Mlejnek, E. M. Wright, and J. V. Moloney, Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air, *Opt. Lett.* **23**, 382 (1998).
- [4] S. Skupin, L. Bergé, U. Peschel, and F. Lederer, Interaction of femtosecond light filaments with obscurants in aerosols, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 023901 (2004).
- [5] C. Sulem and P.-L. Sulem, *The Nonlinear Schrödinger Equation: Self-Focusing and Wave Collapse*, 1st ed. (Springer-Verlag, New York, 1999).
- [6] F. Silva *et al.*, Multi-octave supercontinuum generation from mid-infrared filamentation in a bulk crystal, *Nat. Commun.* **3**, 807 (2012).
- [7] G. Stibenz, N. Zhavoronkov, and G. Steinmeyer, Self-compression of millijoule pulses to 7.8 fs duration in a white-light filament, *Opt. Lett.* **31**, 274 (2006).
- [8] L. Bergé, S. Skupin, Ch. Köhler, I. Babushkin, and J. Herrmann, 3D Numerical simulations of THz generation by two-color laser filaments, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 073901 (2013).
- [9] V. Lorient, E. Hertz, O. Faucher, and B. Lavorel, Measurement of high order Kerr refractive index of major air components, *Opt. Express* **17**, 13429 (2009).
- [10] P. Bédot, J. Kasparian, S. Henin, V. Lorient, T. Vieillard, E. Hertz, O. Faucher, B. Lavorel, and J.-P. Wolf, Higher-order Kerr terms allow ionization-free filamentation in gases, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 103903 (2010).
- [11] M. Kolesik, E. M. Wright, and J. V. Moloney, Femtosecond filamentation in air and higher-order nonlinearities, *Opt. Lett.* **35**, 2550 (2010).
- [12] C. Brée, A. Demircan, and G. Steinmeyer, Saturation of the all-optical Kerr effect, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 183902 (2011).
- [13] C. Köhler, R. Guichard, E. Lorin, S. Chelkowski, A. D. Bandrauk, L. Bergé, and S. Skupin, Saturation of the nonlinear refractive index in atomic gases, *Phys. Rev. A* **87**, 043811 (2013).
- [14] P. Bédot, E. Cormier, E. Hertz, B. Lavorel, J. Kasparian, J.-P. Wolf, and O. Faucher, High-field quantum calculation reveals time-dependent negative Kerr contribution, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 043902 (2013).
- [15] J. K. Wahlstrand and H. M. Milchberg, Effect of a plasma grating on pump-probe experiments near the ionization threshold in gases, *Opt. Lett.* **36**, 3822 (2011).
- [16] L. V. Keldysh, Ionization in the field of a strong electromagnetic wave, *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965).
- [17] A. Spott, A. Jaroń-Becker, and A. Becker, *Ab initio* and perturbative calculations of the electric susceptibility of atomic hydrogen, *Phys. Rev. A* **90**, 013426 (2014).
- [18] K. Schuh, M. Kolesik, E. M. Wright, and J. V. Moloney, Simple model for the nonlinear optical response of gases in the transparency region, *Opt. Lett.* **39**, 5086 (2014).
- [19] M. Richter, S. Patchkovskii, F. Morales, O. Smirnova, and M. Ivanov, The role of the Kramers-Henneberger atom in the higher-order Kerr effect, *New. J. Phys.* **15**, 083012 (2013).
- [20] E. A. Volkova, A. M. Popov, and O. V. Tikhonova, Nonlinear polarization response of an atomic gas medium in the field of a high-intensity femtosecond laser pulse, *JETP Lett.* **94**, 519 (2011).
- [21] E. A. Volkova, A. M. Popov, and O. V. Tikhonova, Nonlinear polarization response of a gaseous medium in the regime of atom stabilization in a strong radiation field, *JETP* **116**, 372 (2013).
- [22] M. V. Fedorov, N. P. Poluektov, A. M. Popov, O. V. Tikhonova, V. Yu. Kharin, and E. A. Volkova, Interference stabilization revisited, *IEEE J. Sel. Top.* **18**, 42 (2012).

FEMTOSECOND FILAMENTATION BY INTENSITY ...

PHYSICAL REVIEW A **92**, 013813 (2015)

- [23] R. R. Freeman, P. H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, and M. E. Geusic, Above-threshold ionization with subpicosecond laser pulses, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1092 (1987).
- [24] G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther, R. Kopold, and W. Becker, Channel-closing-induced resonances in the above-threshold ionization plateau, *Phys. Rev. A* **64**, 021401(R) (2001).
- [25] C. J. Joachain, N. J. Kylstra, and R. M. Potvliege, *Atoms in Intense Laser Fields* (Cambridge University Press, Cambridge, 2011).
- [26] V. Kapoor and D. Bauer, Floquet analysis of real-time wave functions without solving the Floquet equation, *Phys. Rev. A* **85**, 023407 (2012).
- [27] R. M. Potvliege and R. Shakeshaft, Multiphoton processes in an intense laser field: Harmonic generation and total ionization rates for atomic hydrogen, *Phys. Rev. A* **40**, 3061 (1989).
- [28] J. M. Brown, E. M. Wright, J. V. Moloney, and M. Kolesik, On the relative roles of higher-order nonlinearity and ionization in ultrafast light-matter interactions, *Opt. Lett.* **37**, 1604 (2012).
- [29] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, 3rd ed. (Academic Press, New York, 2008).
- [30] H. G. Muller and F. C. Kooiman, Bunching and focusing of tunneling wave packets in enhancement of high-order above-threshold ionization, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1207 (1998).
- [31] H. Lehmeier, W. Leupacher, and A. Penzkofer, Nonresonant third order hyperpolarizability of rare gases and N₂ determined by third harmonic generation, *Opt. Commun.* **56**, 67 (1985).
- [32] S. V. Popruzhenko, V. D. Mur, V. S. Popov, and D. Bauer, Strong field ionization rate for arbitrary laser frequencies, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 193003 (2008).
- [33] N. G. Vakhitov and A. A. Kolokolov, Stationary solutions of the wave equation in a medium with nonlinearity saturation, *Radiophys. Quantum Electron.* **16**, 783 (1975).
- [34] A. V. Mitrofanov *et al.*, Post-filament self-trapping of ultrashort laser pulses, *Opt. Lett.* **39**, 4659 (2014).
- [35] D. Novoa, D. Tommasini, and H. Michinel, Ultrasolitons: Multistability and subcritical power threshold from higher-order Kerr terms, *Europhys. Lett.* **98**, 44003 (2012).
- [36] N. L. Wagner, E. A. Gibson, T. Popmintchev, I. P. Christov, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, Self-compression of ultrashort pulses through ionization-induced spatiotemporal reshaping, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 173902 (2004).
- [37] I. Procino, R. Velotta, C. Altucci, S. Amoruso, R. Bruzzese, X. Wang, V. Tosa, G. Sansone, C. Vozzi, and M. Nisoli, Hollow-fiber compression of visible, 200 fs laser pulses to 40 fs pulse duration, *Opt. Lett.* **32**, 1866 (2007).

C

ADIABATIC FLOQUET MODEL FOR THE OPTICAL
RESPONSE IN FEMTOSECOND FILAMENTS

Adiabatic Floquet model for the optical response in femtosecond filaments

Michael Hofmann¹ and Carsten Brée²

¹Weierstrass Institute for Applied Analysis and Stochastics, Institute for Theoretical Physics at Technical University Berlin, Germany

²Weierstrass Institute for Applied Analysis and Stochastics, Max Born Institute for Nonlinear Optics and Short Pulse Spectroscopy, Germany

E-mail: hofmann@wias-berlin.de

Received 29 April 2016, revised 21 July 2016

Accepted for publication 11 August 2016

Published 4 October 2016



Abstract

The standard model of femtosecond filamentation is based on phenomenological assumptions which suggest that the ionization-induced carriers can be treated as a homogeneous, uncorrelated plasma according to the Drude model, while the nonlinear response of the bound carriers is responsible for the all-optical Kerr effect. Here, we demonstrate that the additional plasma generated at a multiphoton resonance dominates the saturation of the nonlinear refractive index. Since resonances are not captured by the standard model, we propose a modification of the latter in which ionization enhancements can be accounted for by an ionization rate obtained from non-Hermitian Floquet theory. In the adiabatic regime of long pulse envelopes, this augmented standard model is in excellent agreement with direct quantum mechanical simulations. Since our proposal maintains the structure of the standard model, it can be easily incorporated into existing codes for the numerical simulation of femtosecond filaments.

Keywords: light-matter interaction, *ab initio* simulations, metastable states, strong-field ionization

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

1. Introduction

Femtosecond filaments are a versatile tool of nonlinear optics. With the advent of the chirped pulse amplification technique which can deliver ultrashort, intense laser pulses [1], filament generation in gaseous media became possible for the first time [2]. Since the optical power in femtosecond pulses can easily exceed the threshold for nonlinear self-focusing, they can be used to study the catastrophic nonlinear wave collapse [3]. Under loose focusing conditions, however, the onset of plasma defocusing may avoid the collapse and lead to the formation of longitudinally extended filaments. Since filaments have highly directional beam characteristics, they are theoretically described by the forward Maxwell equation [4] or the unidirectional pulse propagation equation [5]. Usually, polarization and current densities are plugged into the propagation equation to account for the optical response of the medium. In the standard model of femtosecond filamentation these quantities are treated phenomenologically [6]: it is

assumed that the nonlinear part of the polarization density is governed by the $\chi^{(3)}$ -nonlinearity, while the current density of the ionization-induced dilute plasma is described by the Drude model. Neglecting third harmonic generation, the standard model can be boiled down to a formula for the field-dependent refractive index change according to

$$\Delta n(t) = n_2 I(t) - \frac{\rho(t)}{2\rho_c}. \quad (1)$$

Here, n_2 is the nonlinear refractive index describing the strength of Kerr self-focusing, $I(t)$ is the temporal intensity envelope of the laser pulse, and ρ is the electron density derived from Keldysh theory [7]. Above the critical plasma density ρ_c , which is related to the plasma frequency according to $\omega_p = \omega_0 \sqrt{\rho/\rho_c}$, the electron plasma becomes opaque. The standard model has proven quite successful in many applications. However, its validity was questioned by an experimental observation of a saturating Kerr nonlinearity known as higher-order Kerr effect (HOKE) [8]. This result

triggered conflicting studies either confirming [9–11] or rejecting [12–14] a possible new paradigm of filamentation.

Since there is a growing consensus that the measured deviations from the standard model cannot be described perturbatively via the HOKE model, one may ask if yet another physical mechanism is responsible? *Ab initio* simulations of light–matter interaction gave promising explanations which are not accounted for by the standard model. Among them are trapped population in Rydberg states [15], formation of Kramers–Henneberger atoms [16] or Freeman resonances [17]. These findings also shed some light on the conceptual problems of the standard model [18], e.g., the ambiguity in the definition of bound and free electrons in atoms dressed by strong laser fields, or the fact that resonance enhancements are neglected in the ionization rate. One striking argument is that the perturbative description of the polarization density fails in the regime of filamentation, rendering HOKE questionable [14, 19]. Therefore, instead of a phenomenological approach, the demand for an alternative model derived from quantum mechanical first principles is growing. For instance, one could calculate the polarization and current densities needed to propagate Maxwell’s equations by direct numerical simulations of the time-dependent Schrödinger equation (TDSE), as done in [20]. However, this coupled *ab initio* approach is numerically cumbersome and not feasible for the desired meter-scale propagation distance, the typical longitudinal extension of laboratory-generated filaments. Therefore, faster computational models for quantum-mechanical calculations of the atomic response have been recently proposed, like the non-local model of [21], or the approach proposed in [22] which describes the response in terms of the field-dressed, metastable ground state.

In the first part of this manuscript, we demonstrate the importance of multiphoton resonances which are not accounted for by the standard model. Our *ab initio* simulations show that resonances can significantly enhance the ionization yield which then dominates the nonlinear refractive index. In the second part, we offer a modification to the standard model with an ionization rate derived from non-Hermitian Floquet theory. Compared with *ab initio* calculations, our model accurately reproduces the impact of enhanced ionization in the adiabatic regime of a slowly varying pulse envelope. The resulting formula for the nonlinear refractive index is evaluated with equal computational costs as the standard model formula of (1) and can be easily integrated into existing numerical routines for filament propagation.

2. Numerical experiment

In a recent publication [17] the current authors demonstrated that ionization enhancements induced by Freeman resonances [23] coincide with a local saturation of the nonlinear refractive index. This saturation, in turn, was shown to influence the input power dependence of the clamping intensity and thus the propagation dynamics of optical filaments. In this section

we extend our previous research and prove that resonantly enhanced ionization is indeed responsible for a dramatic decrease of the nonlinear refractive index. In contrast to our previous work, here we consider the self-induced refractive index modifications seen by a strong pump pulse instead of the cross-induced refractive index change in a pump-probe setup. The optical response is then compared with a modified version of the standard model, in which the density of free electrons obtained from the direct numerical simulations replaces the electron density calculated according to the Keldysh theory.

2.1. Time-dependent Schrödinger equation

We briefly describe the methods for simulating the optical response of a one-dimensional hydrogen atom under the influence of a strong laser field. One-dimensional model atoms are popular toy models and give good qualitative predictions of the dynamics of atoms in strong laser fields. In particular, they were successfully used for theoretical studies of high harmonic generation and atomic stabilization in strong fields [24–26]. Starting from first principles, we write down the TDSE in the dipole approximation using atomic units (au)

$$i\partial_t\psi(x, t) = \left[-\frac{1}{2}\partial_x^2 - \frac{1}{\sqrt{x^2 + \alpha^2}} + E(t)x \right] \psi(x, t). \quad (2)$$

To circumvent the singularity of the atomic potential at the origin, a soft-core potential is used which yields the correct ionization potential of hydrogen, $I_p = 13.6 \text{ eV} \equiv 0.5 \text{ au}$ if $\alpha = \sqrt{2}$. For integrating the TDSE numerically we discretize time $t \rightarrow t_n$ and space $x \rightarrow x_j$ with equal spacings $\tau = \Delta t = 0.01 \text{ au}$ and $h = \Delta x = 0.1 \text{ au}$, respectively. For the second derivative in the Hamiltonian we can write the central difference

$$\partial_x^2\psi \approx \frac{\psi_{j-1} - 2\psi_j + \psi_{j+1}}{h^2}, \quad (3)$$

where ψ_j^n is the wave function at time step t_n on the grid point x_j . Thus, the matrix representing H on the grid has a tridiagonal structure. The implicit Crank–Nicolson propagator is commonly chosen to compute the wave function for the next time step

$$U(t_{n+1}, t_n) = \left(1 + i\frac{\tau}{2}H(t_{n+\frac{1}{2}}) \right)^{-1} \left(1 - i\frac{\tau}{2}H(t_{n+\frac{1}{2}}) \right), \quad (4)$$

which preserves unitarity and is second order accurate in space and time [27]. When the propagator is applied to the wave function, i.e., $\psi^{n+1} = U(t_{n+1}, t_n)\psi^n$, we obtain a set of linear equations

$$M_{n+\frac{1}{2}}^+ \psi^{n+1} = M_{n+\frac{1}{2}}^- \psi^n \quad (5)$$

$$\text{with } M_n^\pm \equiv \left(1 \pm i\frac{\tau}{2}H(t_n) \right). \quad (6)$$

These equations can be efficiently solved using the tridiagonal matrix algorithm [28]. As an initial condition we provide that ψ^0 is the atom’s ground state. Reflections at the spatial ends

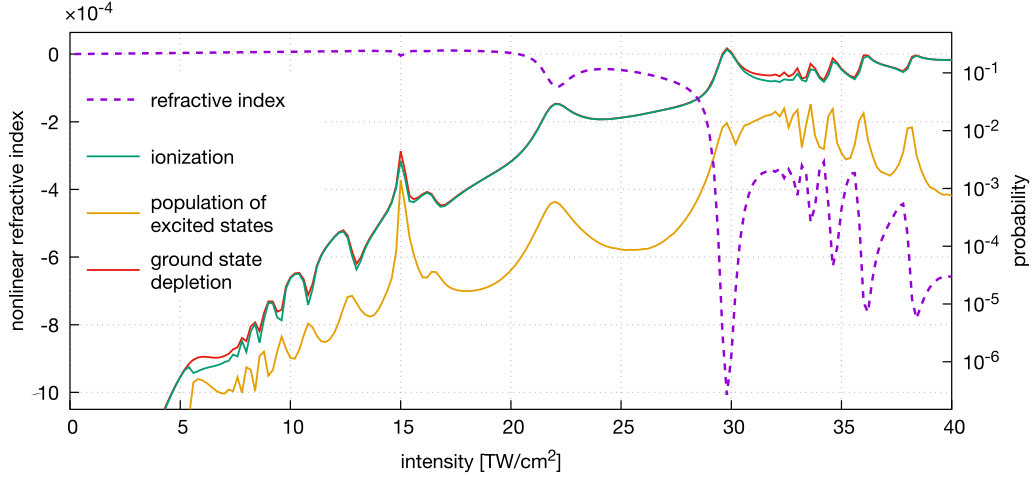


Figure 1. TDSE results for a 80-cycle flat-top pulse. Left axis: nonlinear refractive index (purple, dashed). Right axis: probability of ionization (green), excited states' population (orange) and ground state depletion (red) at the end of the pulse.

of the integration domain are suppressed by a 40 au wide absorbing boundary layer [29].

2.2. Nonlinear refractive index and resonantly enhanced ionization

We consider a laser pulse with a central wavelength of 800 nm, which corresponds to an angular frequency of $\omega_0 = 0.057$ au and an optical cycle length of $T = 2.67$ fs $\equiv 110.3$ au. To ensure that the electric field $E(t)$ has a vanishing DC component, we introduce the vector potential $A(t)$, from which we reconstruct the electric field according to $E(t) = -\partial_t A(t)$. The vector potential has a cosine square envelope

$$A(t) = A_0 \cos^2(\pi t/T_p) \cos(\omega_0 t) \quad (7)$$

for $|t| \leq T_p/2$, where T_p is the total pulse duration, and the peak amplitudes of E and A are related via $E_0 = \omega_0 A_0$. We already know from our previous work that Freeman resonances between laser-dressed states lead to drops in the refractive index, and that those resonances are more pronounced when a long flat-top pulse is used. We therefore additionally employ a flat-top pulse with a four-cycle ramp up and down, respectively, according to (7) but with an 80-cycle long central region of constant amplitude in between.

Having solved the TDSE for a single electron, the polarization density for a gas of hydrogen atoms at standard condition, with number density $\sigma = 4 \times 10^{-6}$ au, can be obtained from the atomic dipole moment

$$P(t_n) = -\sigma \langle \psi^n | x | \psi^n \rangle. \quad (8)$$

Denoting $\hat{X}(\omega)$ as the Fourier transform of $X(t)$, we can define a time-averaged susceptibility and thus a refractive index of the hydrogen gas interacting with the laser pulse

$$\chi = \frac{\hat{P}(\omega_0)}{\epsilon_0 \hat{E}(\omega_0)}, \quad n = \text{Re}(\sqrt{1 + \chi}). \quad (9)$$

By repeating the simulation with variable peak intensity I up to 40 TW cm^{-2} , we obtain an intensity-dependent, nonlinear refractive index

$$\Delta n(I) = n(I) - \lim_{I \rightarrow 0} n(I). \quad (10)$$

To ensure that $n(I)$ correctly captures the response from ionized electrons, the simulation volume is constantly enlarged with increasing I . Thus, less than 0.1% of the total ionization is absorbed at the boundaries.

Our next objective is to seek for correlations between the nonlinear refractive index and the probability of ionization, the population of excited states and the ground state depletion. Thus, we compute the probability that the electron occupies a specific field-free bound state after the pulse is gone. This can be extracted directly from the wave function at the end of the pulse by projecting onto those eigenvectors of the discrete Hamiltonian which correspond to bound atomic states, denoted as ϕ_k ,

$$\beta_k = |\langle \phi_k | \psi(T_p/2) \rangle|^2 \quad \text{and} \quad \beta_{\text{bound}} = \sum_k \beta_k. \quad (11)$$

In practice, the sum in (11) includes the first 100 bound states which is enough to ensure convergence of β_{bound} . Obviously, the ground state depletion is $1 - \beta_0$, and the probability for the electron to be in an excited state is $\beta_{\text{bound}} - \beta_0$. The ionization probability is defined as the non-bound part of the wave function, $\beta_{\text{free}} = 1 - \beta_{\text{bound}}$.

Results for the 80-cycle flat-top pulse with $T_{\text{FWHM}} = 215.8$ fs are shown in figure 1. The nonlinear refractive index (purple) exhibits local drops around peak intensities of 15, 22 and 30 TW cm^{-2} as well as above 31 TW cm^{-2} . Apparently, these drops coincide with an increased ground state depletion (red). The depletion is mainly caused by enhanced transitions into the continuum (green), since the probability to end up in an excited bound state (orange) is 1–2 orders of magnitude smaller. The origin of the enhanced ionization probability are Freeman resonances, as discussed in [17]. To consolidate the existence of

Freeman resonances in the optical response, we briefly sketch how they occur: since the ground state of an atom is strongly bound, its energy remains almost constant when an external field is applied. With increasing intensity, however, the AC Stark effect shifts the energy levels of the dressed Rydberg states by the ponderomotive potential, $U_p = E^2/(4\omega_0^2)$. Eventually, a Freeman resonance arises when the energy difference between a Rydberg state and the ground state is a multiple of the photon energy. These resonances are usually preceded by a channel closure, which occurs when the ground state is in multiphoton resonance with the ponderomotively up-shifted continuum threshold. In consequence, we expect an enhanced population of the participating Rydberg state at a Freeman resonance. Indeed, above the 9-photon channel closure at 5.5 TW cm^{-2} in figure 1, we observe an increase and successive peaks in the occupation probability of the excited states. Interestingly, this seems to be anticorrelated to the ionization probability, which is decreased at the same intensities, most likely due to interference stabilization [30]. This stabilization vanishes for peak intensities $\geq 15 \text{ TW cm}^{-2}$, where transitions into both bound and continuum states are resonantly enhanced.

We now look closer at individual Rydberg states which should be dominantly populated at a Freeman resonance. As shown in figure 2(a), we resolve transitions up to the 31st excited state just after the 9-photon channel closure. Note that parity conservation prohibits a 9-photon transition from the even ground state to even excited states, thus only transitions to odd-parity states are allowed. After the 10-photon channel closure at 30.2 TW cm^{-2} in figure 2(d), we again observe Freeman resonances, now with 10-photon transitions to even-parity excited states. Somehow different are the resonances near 15, 22 and 30 TW cm^{-2} in figures 2(b) and (c): increasing the peak intensity beyond the range of figure 2(a), we expect transitions to the 7th, 5th and 3rd excited state, since with increasing intensity lower lying excited states come into multiphoton resonance with the ground state. However, these transitions are not dominant since the population of other excited states is of same magnitude. Obviously, multiple excited states contribute to these resonances. This may be related to the fact that the energy shift of lower lying excited states shows a more complicated behavior than that of Rydberg states. Resulting interactions between dressed excited states may lead to a parity change, which explains that also even-numbered excited states are occupied. Nevertheless, these ‘mixed resonances’ facilitate enhanced ionization as seen in figure 1.

2.3. Modification of the standard model

The observations of the last paragraph clearly indicated that resonances in the refractive index are correlated to the ground state depletion. Our results also revealed that the ground state depletion is dominated by transitions into the continuum. They therefore confirm the standard model assumption that the refractive index saturation stems from free electrons. A significant difference to the standard model, however, lies in

the physical mechanism underlying the ionization enhancement which we identified as resonances between laser-dressed states. Thus, the standard model should be able to reproduce our simulation results if the resonantly enhanced ionization is taken into account. To test this assumption, we write down a modified, time-independent version of the nonlinear refractive index (1)

$$\Delta n(I) = n_2 I - \eta \frac{\rho_{\text{fin}}(I)}{2\rho_c}, \quad (12)$$

where I is the peak intensity of the laser pulse. Furthermore, we have to take into account that the density of free carriers is unambiguously defined only for a vanishing external electric field [31]. We therefore replaced in (1) the Keldysh-like ionization density $\rho(t)$ with the electron density at the end of the pulse $\rho_{\text{fin}}(I)$ calculated from the direct numerical simulations, multiplied by a correction factor $\eta = 0.5$ as justified in the appendix. We then compare three different cases:

$$\rho_{\text{fin}}(I) = \sigma \begin{cases} \beta_{\text{free}}(I) & \text{case A} \\ \beta_{\text{free}}(I) + \beta_{\text{Ryd}}(I) & \text{case B} \\ 1 - \beta_0(I) & \text{case C.} \end{cases} \quad (13)$$

Case A considers only ionized electrons, whereas case B includes the population in Rydberg states. This is motivated by the fact that their contribution to the refractive index is similar to that of free electrons [32]. Additionally, electrons which are freed during the pulse may be captured back into Rydberg states when the field is gone. Here, we consider all states above the ninth excited state as Rydberg states since their corresponding Floquet energies shift with the ponderomotive potential (cf figure 1 in [17]). The probability to find the atom in a Rydberg state is then given by $\beta_{\text{Ryd}} = \sum_{k>9} \beta_k$. The overall population of excited states, however, is small compared to the ionization probability as seen in figure 1. Therefore, case C considers the full ground state depletion and may serve as a simple, but accurate approximation.

Results are presented in figure 3 together with the exact TDSE calculation (10) for different pulse shapes and lengths. First, we employed the 80-cycle flat-top pulse. For low peak intensities shown in panel (a), the refractive index for both model (A: green, B: orange, C: red) and simulation (purple, dashed) follows the Kerr-nonlinearity $n_2 I$ (gray, dashed-dotted) until ionization becomes non-negligible. However, beyond 8 TW cm^{-2} , the TDSE result is obviously superlinear, indicating that the next coefficient in a perturbative description n_4 would be positive. Actually, a superlinear correction proportional to I^2 renders the agreement between model and simulation astounding close. For the 15 TW cm^{-2} resonance, the drop in the refractive index is significantly larger than predicted by model case A and B (which overlap in this panel). Case C, on the other hand, is closer to the simulation result. This observation also holds for resonances at 22 TW cm^{-2} and 29.8 TW cm^{-2} in panel (b) which shows the full intensity range on a larger scale for the same flat-top pulse. All in all the deviation

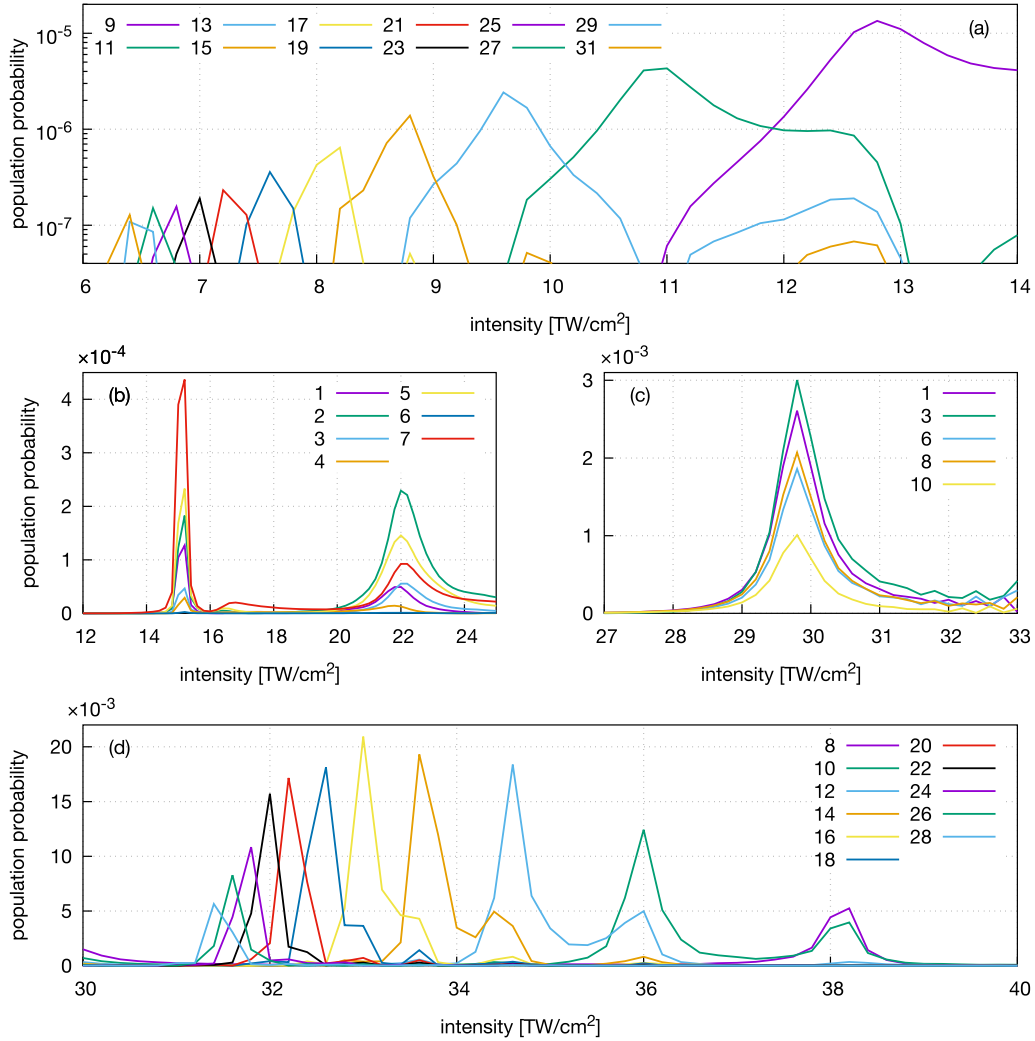


Figure 2. Population transfer to excited states (given by the number in the legend) after the pulse is gone. Only significantly populated states are shown. Enhancements give evidence of resonances between field-dressed states: (a) and (d) Freeman resonances after the 9- and 10-photon channel closure, respectively. (b) and (c) ‘Mixed resonances’ involving multiple excited states.

remains small. After the 10-photon channel closure, the increased population of Rydberg states (cf figure 2) becomes noticeable in the refractive index. As expected, case A (ionization only) deviates from the simulation while case B and C are in good agreement. Model and simulation astonishingly coincide even for a purely $\cos^2$ -pulse as shown in panel (c), where the total pulse duration is 96 cycles ($T_{\text{FWHM}} = 93.3$ fs). Again, we notice deviations in case A for peak intensities larger than 30 TW cm^{-2} , but case B and C are close to the numerical result. For the 24-cycle pulse ($T_{\text{FWHM}} = 23.3$ fs) in panel (d), we observe increasing deviations from our model as the Kerr nonlinearity and the plasma response assume comparable magnitudes, i.e., for intensities beyond the zero-crossing of the nonlinear refractive index. These deviations, however, remain small and the qualitative behavior is reproduced.

Overall, our modification of the standard model is in remarkable agreement with the nonlinear refractive index from pure TDSE calculations, manifesting the conclusion that resonantly enhanced ionization is the driving component in its saturation and sign inversion.

3. Adiabatic Floquet resonance model for the nonlinear optical response

In this part of the manuscript, the results of our numerical studies will be cast into an augmented standard model of the optical response in filaments which can be easily built into existing numerical simulation codes for femtosecond filamentation. Our proposed adiabatic Floquet resonance (AFR) model is based on the following observations: first, we have

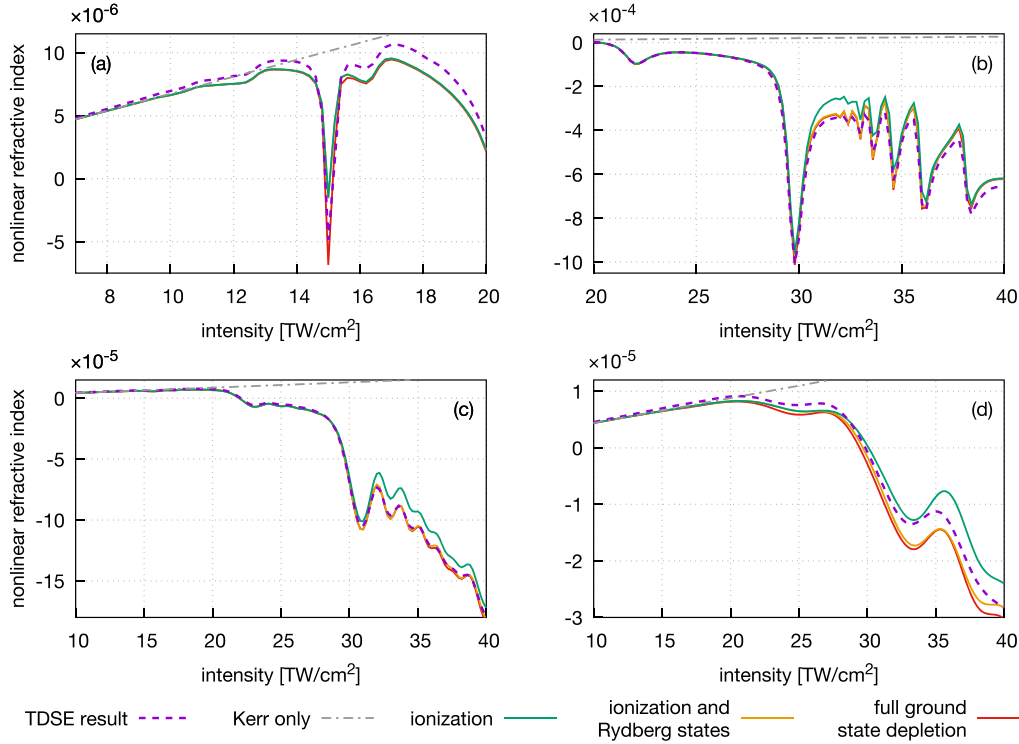


Figure 3. Comparison of the nonlinear refractive index from TDSE (purple, dashed) with the modified standard model (12), cases A (green), B (orange) and C (red). The dashed-dotted line indicates the extrapolated, linear Kerr contribution. (a) and (b) 80-cycle flat-top pulse. (c) and (d) cos-pulse with 96 and 24 cycles.

convinced ourselves that the optical response is mainly determined by resonantly enhanced transitions from the ground state and the resulting ground state depletion. Second, we have shown that the Kerr part of the standard model is nearly unaffected by the considered non-perturbative effects. In consequence, our model for the time-dependent nonlinear refractive index is

$$\Delta n^{\text{AFR}}(t) = n_2 I(t) - \frac{\rho_0(t)}{2\rho_c}, \quad (14)$$

where $\rho_0(t) = \sigma(1 - \beta_0(t))$ is the macroscopic ground state depletion. In principle, $\rho_0(t)$ has to be extracted from direct numerical simulations of the TDSE, and nothing would be gained. Nevertheless, in the adiabatic regime of a slowly varying pulse envelope, we can make use of non-Hermitian Floquet theory to calculate the decay rate $w[I]$ of the ground state. The ground state depletion $\rho_0(t)$ is then governed by the rate equation

$$\partial_t \rho_0(t) = w[I(t)](\sigma - \rho_0(t)), \quad (15)$$

Since in the adiabatic case, no transitions to excited states occur, the decay rate $w[I]$ is identical with the ionization rate, and ρ_0 is the density of free electrons, in complete correspondence to the usual standard model. For our AFR model it is therefore sufficient to replace the Keldysh-type ionization rate in the standard model by an ionization rate obtained from the non-Hermitian Floquet theory.

3.1. Calculation of Floquet multipliers and eigenstates

Non-Hermitian Floquet theory describes the atom dynamics in terms of Floquet resonances [33]. These are metastable electronic states in a finite volume which are subject to outgoing wave boundary conditions and thus take ionization effects into account. In this approach, the ionization rate is identical to the inverse lifetime of the Floquet ground state resonance. To ensure L^2 -integrability of the resonance wave functions, we employed complex rotation $x \rightarrow xe^{i\theta}$ to the Hamiltonian

$$H(x) = -\frac{1}{2}\partial_x^2 - \frac{1}{\sqrt{x^2 + \alpha^2}} - iA(t)\frac{\partial_x}{\partial x}. \quad (16)$$

Here, we opted for the velocity gauge, since in the length gauge, complex rotation would result in a blow-up of the wave function during time propagation. The ionization rate and Floquet resonances can be obtained from the Floquet eigenvalue equation [34–36]

$$(H(xe^{i\theta}) - i\partial_t)\phi(x, t) = \epsilon_\alpha \phi(x, t), \quad (17)$$

where ϵ_α is the complex quasi-energy and $\Gamma_\alpha = -2 \text{Im } \epsilon_\alpha$ is the inverse lifetime of a resonance. The Floquet wave function $\Psi = e^{-i\epsilon_\alpha t}\phi$ [37] is quasi-periodic with

$$\Psi(x, t + T) = e^{-i\epsilon_\alpha T}\Psi(x, t), \quad (18)$$

where $T = 2\pi/\omega_0$ is period of the laser pulse. Ψ decays exponentially due to the negative imaginary part of the quasi-

energy ϵ_α (with $\Gamma_\alpha > 0$). Typically, the ground state resonance ϕ_0 is the most stable eigensolution with the smallest decay rate Γ_0 , which can be interpreted as the rate of ionization from the ground state. This is exactly the quantity we are interested in to build our augmented standard model. Instead of solving (17) directly, we note that by substituting $\Psi(x, t + T) = U(T) \Psi(x, t)$ into (18), it can be rewritten as an eigenvalue equation for the one-cycle propagator $\mathcal{U} \equiv U(T)$. Consequently, the Floquet wave functions are eigenfunctions of $\mathcal{U}$, whereas the Floquet multipliers $e^{-i\epsilon_\alpha T}$ are the corresponding eigenvalues [38]. For diagonalization of $\mathcal{U}$ we employ the eigenvectors χ_n of the discrete counterpart of the free particle Hamiltonian $H_0 = -\partial_x^2/2$. By propagating χ_n along one optical cycle we calculate the matrix elements

$$\mathcal{U}_{mn} = \langle \chi_m(0) | \mathcal{U} | \chi_n(0) \rangle = \langle \chi_m(0) | \chi_n(T) \rangle. \quad (19)$$

Since the results of this section require an accurate determination of the complex quasienergies, for the numerical propagation of the $|\chi_n\rangle$, we employed a fourth-order scheme for the spatial derivatives based on the Numerov approximation employed in [39]. In fact, this procedure does not affect the tridiagonal property of the short-distance propagator, such that the Crank-Nicolson scheme of section 2.1 can be maintained here. Diagonalization of $\mathcal{U}$ then yields the complex Floquet multipliers $e^{-i\epsilon_\alpha T}$ and the corresponding Floquet states ϕ_α . Note that in the analytic theory, according to the Balslev–Combes theorem [40, 41], the quasi-energies of the quasi-bound resonances do not depend on the chosen rotation angle θ . However, this does not necessarily hold true for the numerical treatment, since one usually diagonalizes $\mathcal{U}$ using either a truncated set of basis functions or a finite space grid. In these cases, the rotation angle has to be chosen such that the quasi-energies become stationary with respect to a variation of θ . In our case, we obtain reasonable results for $\theta = 0.3$.

In figure 4, we plot the Floquet multipliers $e^{-i\epsilon_\alpha T}$ in the complex plane for two different values of θ . The multipliers corresponding to the discrete quasi-continuum can be observed to spiral into the origin. In accordance with the Balslev–Combes theorem, the continuum energies are transformed as $\epsilon_c \rightarrow \epsilon_c e^{-2i\theta}$, and the positions of the corresponding Floquet multipliers consequently depend on the rotation angle θ . In contrast, the positions of the multipliers corresponding to Floquet resonances are stationary w.r.t. θ -variation. Therefore, a small change in θ allows for a straightforward identification of the Floquet resonances. Furthermore, the distance of the Floquet multipliers to the unit circle is a measure of the lifetime Γ . While the Floquet multipliers of stable bound states ($\Gamma = 0$) are located on the contour $\mathcal{C}$ of the unit circle, the lifetime $\tau = 1/\Gamma$ of a resonance decreases with increasing distance from $\mathcal{C}$. Going from $I = 5 \text{ TW cm}^{-2}$ in figure 4(a) to 22 TW cm^{-2} in (b), resonances move closer to the origin for higher intensities, i.e., they are less stable and ionization is increased. Additionally, in panel (b), we observe resonances with almost the same complex angle in the polar plot. Since a full rotation corresponds to an energy difference of one photon energy, these resonances facilitate multiphoton transitions.

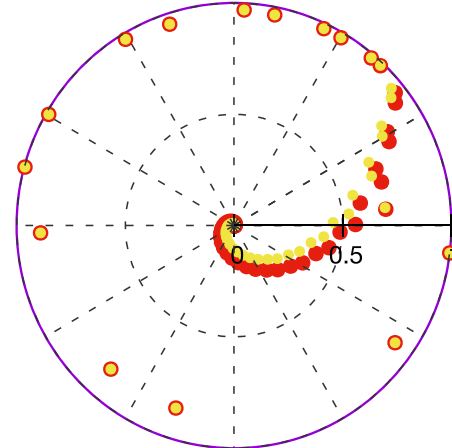
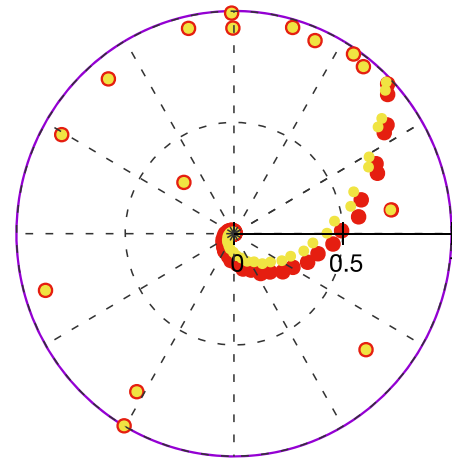

 (a) $I = 5 \text{ TW/cm}^2$

 (b) $I = 22 \text{ TW/cm}^2$

Figure 4. Polar plot of the Floquet multipliers $e^{-i\epsilon_\alpha T}$ at two different intensities. Red dots: complex rotation $x e^{i\theta}$ with angle $\theta = 0.30$. Yellow dots: $\theta = 0.34$. Floquet resonances are stable w.r.t. θ -variation and can therefore be identified as superimposed red and yellow dots. A full rotation corresponds to an energy difference of one photon energy. The distance to the unit circle (purple) is a measure for the decay rate of a resonance.

To calculate an intrapulse ionization rate Γ_0 for the ground state resonance, we solve the eigenvalue equation (18) for a set of intensities up to 40 TW cm^{-2} . When the intensity increases above a channel closure, Γ_0 exhibits pronounced peaks stemming from multiphoton or Freeman resonances, as shown in figure 6(a). In principle, the obtained ionization rate is valid only in the adiabatic regime of a slowly varying pulse envelope. In this case, resonantly enhanced ionization transfers an electron in the ground state resonance directly into the continuum, without populating the intermediate resonant state, as pointed out in [42]. However, as the pulse approaches the few-cycle regime, population transfer to excited Floquet resonances has to be taken into account, and the pronounced

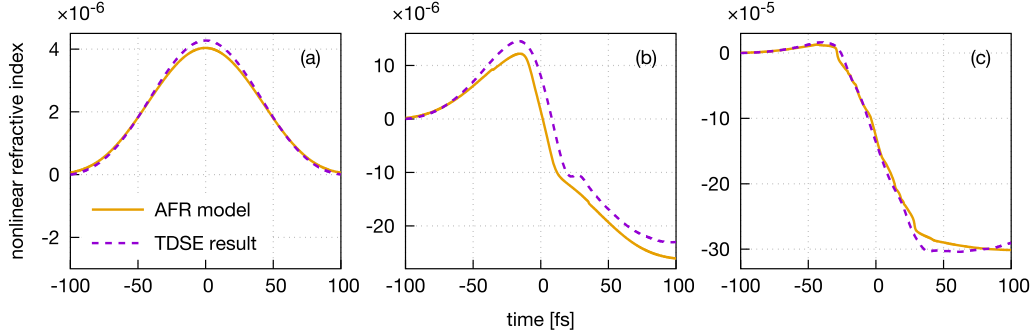


Figure 5. Time-dependent nonlinear refractive index $\Delta n(t)$ for a 96-cycle $\cos^2$ -pulse with peak intensities $I = 6.2 \text{ TW cm}^{-2}$ (a), 22.2 TW cm^{-2} (b) and 38.2 TW cm^{-2} (c). Solid lines: $\Delta n^{\text{AFR}}(t)$ according to the AFR model, (14) and (15). Dashed lines: $\Delta n(t)$ from direct numerical simulations using (20).

resonance peaks in $\Gamma_0(I)$ are expected to smear out for shorter pulses.

3.2. Augmented standard model with ionization rate from non-Hermitian Floquet theory

Having calculated the ionization rate Γ_0 , we can compare the predictions from our AFR model (14) and (15) with the results of direct numerical simulations. First, we solve the TDSE to obtain the polarization density $P(t)$ for the given electric field $E(t)$. From these quantities, a time dependent susceptibility $\chi(t)$ is computed by forming the ratio of the corresponding complex analytic signals [43]

$$\chi(t) = \frac{\mathcal{P}(t)}{\epsilon_0 \mathcal{E}(t)} \quad (20)$$

with $\mathcal{P} = P + i\mathcal{H}(P)$ (and likewise $\mathcal{E}$), and $\mathcal{H}$ is the Hilbert transform. From (20), the (*ab initio*) nonlinear refractive index is obtained as $\Delta n(t) = \sqrt{1 + \chi(t)} - n_0$, where n_0 is the field-free background refractive index. In order to obtain the corresponding predictions of the AFR model, denoted as $\Delta n^{\text{AFR}}(t)$, we have to determine the nonlinear index n_2 : for intensities below 1 TW cm^{-2} , i.e., in the perturbative Kerr regime, the refractive index reproduces the intensity profile of the pulse, $\Delta n(t) = n_2 I(t)$. After evaluating $\Delta n(t)$ from TDSE at the local maxima of $I(t)$ for a series of low peak intensities, a linear fit yields $n_2 = 6.5 \times 10^{-7} \text{ cm}^2 \text{ TW}^{-1}$. This allows the evaluation of the Kerr part of the nonlinear refractive index $\Delta n^{\text{AFR}}(t)$. The plasma part in (14) can be calculated by plugging the ionization rate Γ_0 into the rate equation (15) and by integrating the latter for temporal intensity profiles $I(t)$.

Figure 5 shows temporally resolved refractive indices for peak intensities 6.2 , 22.2 and 38.2 TW cm^{-2} using a $\cos^2$ -pulse with 96 cycles. If we compare the AFR results (orange) to that of the direct simulations (purple, dashed), we find that our model gives excellent predictions for the nonlinear refractive index: we clearly see that in the leading edge the pulse profile is recovered in accordance with the Kerr nonlinearity $\Delta n(t) = n_2 I(t)$, panel (a) and (b). However, as plasma accumulates during the laser-atom interaction, the refractive index correction in the trailing edge of the pulse

becomes more negative and turns the nonlinearity into a defocusing one, panel (b) and (c). This behavior is also well-known from the standard model and responsible for the dynamic spatial replenishment scenario described in [44].

To conclude our comparison with TDSE results, we derive the intensity dependence of the refractive index as predicted by the AFR model. In particular, if we know the polarization density $P^{\text{AFR}}(t)$, we can employ (9) to calculate the time-averaged susceptibility $\chi^{\text{AFR}}(\omega_0)$ at the center frequency of the pulse. In order to construct $P^{\text{AFR}}(t)$, we use the general relation

$$P(t) = \epsilon_0 \chi(t) E(t) \quad \text{and} \quad \chi(t) = n^2(t) - 1, \quad (21)$$

where, in this case, $n(t) = n_0 + \Delta n^{\text{AFR}}(t)$. The nonlinear refractive index $\Delta n^{\text{AFR}}(I)$ then directly follows from (9) upon Fourier transform of $P^{\text{AFR}}(t)$ and $E(t)$ with various peak intensities I .

In figures 6(b)–(d), we show the intensity-dependent refractive indices obtained from both model and simulation versus peak intensity I : for a flat-top comprising of 80 optical cycles (b) as well as for $\cos^2$ -envelopes with $T_p = 96 T$ (c) and $T_p = 24 T$ (d). For the long flat-top pulse, the agreement between the direct numerical calculation and the augmented standard model are indeed excellent. In fact, for long pulses we can employ the adiabatic approximation with respect to the pulse envelope: here, the wave function remains in the ground state resonance which adiabatically adapts to the instantaneous intensity. In this case, the ionization rate Γ_0 accurately describes the actual ionization from the ground state resonance. Moving to shorter pulses in figures 6(c) and (d), however, we see deviations between the two calculations. Especially, above 30 TW cm^{-2} , the AFR refractive index exhibits strong resonances, which appear smeared out in the $\Delta n(I)$ from the direct simulations. Obviously, for shorter pulses, the evolution of the envelope can no longer be considered adiabatic. In consequence, transitions occur from the ground state resonance to higher lying resonances, and the ionization rate Γ_0 becomes less accurate.

To conclude this section, we point out that we cross checked our results for the one-dimensional model atom with results from non-Hermitian Floquet calculations for a full three-dimensional (3D) model of atomic hydrogen,

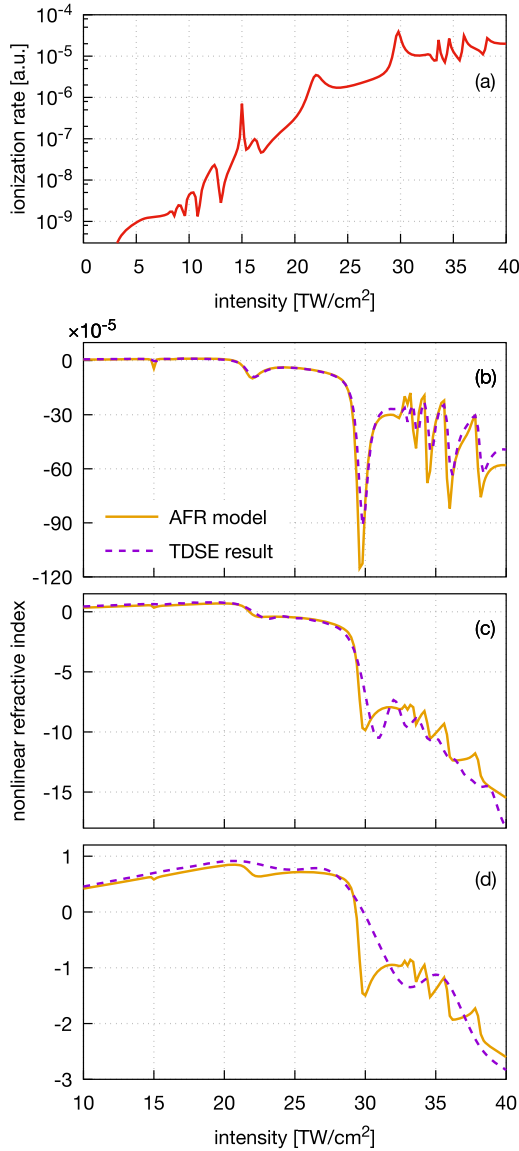


Figure 6. Ionization rate Γ_0 of the ground state Floquet resonance versus intensity (a). Intensity-dependent refractive index for a 80-cycle flat-top pulse (b) or $\cos^2$ -pulses with 96 (c) and 24 optical cycles (d).

employing the STRFLO eigensolver of [45], which is available for online download [46]. For the 3D case, we found qualitatively comparable resonance structures in the decay rate of the Floquet ground state resonance. These resonances were also present in full 3D TDSE simulations [39] for finite envelope pulses, giving rise to resonantly enhanced ionization yields at the end of the pulses. However, we observed that finite envelope effects, i.e., non-adiabaticity in the pulse envelope, have a more pronounced impact in 3D: the resonances seen by a 90 fs pulse are slightly more smeared out than in the discussed one-dimensional case. We therefore repeated our 3D simulations for slightly longer 120 fs pulses,

in case of which the clear visibility of the resonances in the ionization fraction was restored. This leads us to conclude that the qualitative predictions of our model are equally valid for the three-dimensional model atom.

4. Conclusion

In our manuscript, we propose an augmented standard model for the phenomenological description of the optical response in femtosecond filaments. Our AFR model maintains the structure of the standard model, which is written as a sum of the Kerr-induced refractive index change and a plasma-induced one, where the time-dependence of the plasma generation is governed by an ionization rate $w[I]$. However, instead of an ionization rate derived from Keldysh theory, we employ an ionization rate obtained from non-Hermitian Floquet theory.

The development of our model was led by numerical experiments which clearly showed that resonantly enhanced ionization has a strong impact on the nonlinear refractive index modifications. Of course, this raises the question whether these resonances actually influence the dynamics of femtosecond filaments. Clearly, for pulse durations of several picoseconds and field strength much larger than 10^{18} W m^{-2} , this is not the case. Instead, for these pulse parameters, Freeman resonances are washed out since the energy spectrum of free electrons resulting from above-threshold, multiphoton ionization is averaged over a focal volume. The latter effect can be attributed to the ponderomotive force which pushes the electrons out of the laser focal volume [23]. However, as shown in [6], for the typical pulse durations and field-strengths in femtosecond filaments, the resulting electron displacement due to the ponderomotive force is negligible compared to the optical beam waist. We thus may expect that resonances have a noticeable impact on filamentary propagation for the pulse durations of some 100 femtoseconds considered in the present work. The possible impact of these resonances on the filamentary propagation on femtosecond pulses was theoretically explored in our previous work [17]. Moreover, multiphoton resonances in nitrogen N_2 may enhance molecular dissociation processes, an important prerequisite for experimentally inducing bidirectional air lasing [47]. Interestingly, resonance-related drops in the nonlinear susceptibility or polarizability were identified in [16, 48, 49]. However, the main mechanism leading to the local decrease of the refractive index was not discussed, namely the resonantly enhanced ionization yield. Our numerical results showed that the optical response is dominated by the ordinary Kerr effect and the ground-state depletion, i.e., the plasma-like response of Rydberg and free electrons. We were thus led to the conclusion that an augmented standard model may be obtained by replacing the Keldysh-like ionization rate in the plasma term by an ionization rate derived from non-Hermitian Floquet theory—since in the adiabatic regime Floquet theory accurately captures ionization enhancements due to multiphoton resonances.

The AFR model yields excellent results in agreement with the *ab initio* TDSE calculation of the nonlinear refractive index. Our results also seem to rule out the necessity to introduce higher-order Kerr terms, since our modified standard model only contains the lowest order Kerr term $n_2 I$. We therefore suggest that it is mainly resonance-enhanced ionization which led to the discrepancies between the experimental results of [8] and the standard model predictions. For a conclusive proof of our suggestion, though, it is essential to numerically reenact the experimental protocol of [8], which utilized a non-collinear pump-probe setup to detect the Kerr-induced birefringence. This requires full three-dimensional simulations of the TDSE and offers the chance for a detailed understanding of what was actually measured in the experiment.

An important issue which has to be deepened in further research is the transition from adiabatic to non-adiabatic pulse envelopes. As our calculations have shown, the ionization rate Γ_0 fails to accurately describe the ionization dynamics in the latter case. In fact, for few-cycle pulses whose envelope evolves on time-scales comparable to the optical carrier, the quantum adiabatic theorem is not applicable, and the dynamics are no longer governed by the Floquet ground state resonance alone. Instead, transitions to excited resonant states have to be considered. In principle, this can be taken into account by solving the time-dependent Schrödinger equation in a basis of resonant states, by employing, e.g., non-Hermitian generalizations of the short-pulse Floquet method suggested in [50] or the adiabatic perturbation theory of [51]. We also note that a closely related approach has recently been proposed in [22]. However, while our approach is based on Floquet theory and assumes that the time scale on which the envelope evolves is much larger than the optical cycle, the aforementioned authors employ the adiabatic approximation on the level of the optical carrier wave. Their approach is thus especially suited to pulses in the quasistatic, long wavelength regime, and non-adiabatic corrections have to be considered for shorter wavelength pulses, which is further discussed in [52]. In contrast, the domain of validity of our approach extends to shorter wavelengths, but requires non-adiabatic corrections for few-cycle pulses, as discussed above. Nevertheless, we expect that our adiabatic Floquet model and future non-adiabatic corrections thereof are especially suited for capturing the essential physics when multiphoton resonances are involved. Altogether, we believe that a promising path towards an efficient model of light-matter interaction consists of analyzing the interaction in a basis of complex-scaled Floquet resonances.

Acknowledgments

We thank Albert Ferrando, Felipe Morales and Maria Richter for valuable remarks on resonances in the nonlinear optical response. We also like to express our gratitude towards Matthias Wolfrum and Oleh Omel'chenko for fruitful discussions about Floquet theory. Financial support by the

Deutsche Forschungsgemeinschaft, grant BR 4654/1-1, is gratefully acknowledged.

Appendix

In the following, we discuss the introduction of the correction factor η employed in section 2.3, which, for the employed pulse profiles, is found to be close to a numerical value of 0.5. First of all, albeit an exact definition of an instantaneous, intrapulse electron density suffers from the gauge ambiguity, we assume for the derivation that an instantaneous ionization rate $w[I(t)]$ exists. Then, the time-dependent electron density satisfies a rate equation $\partial_t \rho(t) = w[I(t)](\sigma - \rho(t))$, whose solution for small ionization ratios may be approximated as

$$\rho(t) \approx \sigma \int_{-\infty}^t w[I(\tau)] d\tau. \quad (22)$$

Under the assumption that the intensity profile $I(t)$ is an even function, the electron density exhibits the symmetry $\rho(-t) = -\rho(t) + \rho_{\text{fin}}$. The contribution of the free electrons to the ω_0 -component of the polarization density may be written as

$$\begin{aligned} \hat{P}_{\text{ion}}(\omega_0) &= -\frac{\epsilon_0}{\rho_c} \int_{-\infty}^{\infty} dt \rho(t) E(t) e^{i\omega_0 t} \\ &= -\frac{\epsilon_0}{2\rho_c} \int_{-\infty}^{\infty} dt \rho(t) \mathcal{E}_{\text{env}}(t), \end{aligned} \quad (23)$$

where $\mathcal{E}_{\text{env}}(t) = \mathcal{E}(t) e^{i\omega_0 t}$ denotes the complex envelope of the real electric field $E(t) = (\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}^*(t))/2$. Here, we neglected the integral over the fast oscillating term $\mathcal{E}_{\text{env}}^* e^{+i2\omega_0 t}$. We may now use the symmetry of $\rho(t)$ to recast this equation into

$$\hat{P}_{\text{ion}}(\omega_0) = -\frac{\epsilon_0}{4\rho_c} \int_{-\infty}^{\infty} dt (\rho(t) - \rho(-t) + \rho_{\text{fin}}) \mathcal{E}_{\text{env}}(t). \quad (24)$$

Noting that our employed pulse envelopes $\mathcal{E}_{\text{env}}$ are real-valued and symmetric, the integral over the odd function $(\rho(t) - \rho(-t)) \mathcal{E}_{\text{env}}(t)$ vanishes, and we are left with

$$\hat{P}_{\text{ion}}(\omega_0) = -\frac{\epsilon_0}{4\rho_c} \rho_{\text{fin}} \int_{-\infty}^{\infty} dt \mathcal{E}(t) e^{i\omega_0 t} = -\epsilon_0 \frac{\rho_{\text{fin}}}{2\rho_c} \hat{E}(\omega_0), \quad (25)$$

where we used $\hat{\mathcal{E}}(\omega_0) = 2\hat{E}(\omega_0)$. Finally, using $\chi(\omega_0) = \hat{P}(\omega_0)/(\epsilon_0 \hat{E}(\omega_0))$ and $n(\omega_0) = \sqrt{1 + \chi(\omega_0)} \approx 1 + \chi(\omega_0)/2$, we find that the plasma correction Δn_{ion} to the nonlinear refractive index is given by

$$\Delta n_{\text{ion}}(\omega_0) = -\eta \frac{\rho_{\text{fin}}}{2\rho_c}, \quad (26)$$

with a correction factor $\eta = 0.5$ which is absent in the time-dependent formulation.

Deviations from this factor can result from memory effects in the ionization rate, i.e., an explicit time dependence of the ionization rate $w[I(t), t]$. Such an explicit time-dependence can occur when a significant fraction of the ground-state population is transferred to higher excited states.

The latter effect decreases with the adiabaticity of the laser pulse envelope.

References

- [1] Strickland D and Mourou G 1985 Compression of amplified chirped optical pulses *Opt. Commun.* **56** 219
- [2] Braun A, Korn G, Liu X, Du D, Squier J and Mourou G 1995 Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air *Opt. Lett.* **20** 73
- [3] Gaeta A L 2000 Catastrophic collapse of ultrashort pulses *Phys. Rev. Lett.* **84** 3582
- [4] Husakou A V and Herrmann J 2001 Supercontinuum generation of higher-order solitons by fission in photonic crystal fibers *Phys. Rev. Lett.* **87** 203901
- [5] Kolesik M, Moloney J V and Mlejnek M 2002 Unidirectional optical pulse propagation equation *Phys. Rev. Lett.* **89** 283902
- [6] Bergé L, Skupin S, Nuter R, Kasparian J and Wolf J-P 2007 Ultrashort filaments of light in weakly ionized, optically transparent media *Rep. Prog. Phys.* **70** 1633
- [7] Keldysh L V 1965 Ionization in the field of a strong electromagnetic wave *Sov. Phys. JETP* **20** 1307
- [8] Loriot V, Hertz E, Faucher O and Lavorel B 2009 Measurement of high order Kerr refractive index of major air components *Opt. Express* **17** 13429
- [9] Béjot P, Kasparian J, Henin S, Loriot V, Vieillard T, Hertz E, Faucher O, Lavorel B and Wolf J-P 2010 Higher-order Kerr terms allow ionization-free filamentation in gases *Phys. Rev. Lett.* **104** 103903
- [10] Ettoumi W, Béjot P, Petit Y, Loriot V, Hertz E, Faucher O, Lavorel B, Kasparian J and Wolf J-P 2010 Spectral dependence of purely-Kerr-driven filamentation in air and argon *Phys. Rev. A* **82** 033826
- [11] Brée C, Demircan A, Steinmeyer G and Bree C 2012 Kramers-Kronig relations and high-order nonlinear susceptibilities *Phys. Rev. A* **85** 33806
- [12] Polynkin P, Kolesik M, Wright E M and Moloney J V 2011 Experimental tests of the new paradigm for laser filamentation in gases *Phys. Rev. Lett.* **106** 153902
- [13] Kosareva O, Daigle J-F, Panov N, Wang T, Hosseini S, Yuan S, Roy G, Makarov V and Leang Chin S 2011 Arrest of self-focusing collapse in femtosecond air filaments: higher order Kerr or plasma defocusing? *Opt. Lett.* **36** 1035
- [14] Volkova E A, Popov A M and Tikhonova O V 2012 Polarisation response of a gas medium in the field of a high-intensity ultrashort laser pulse: high order Kerr nonlinearities or plasma electron component? *Quantum Electron.* **42** 680
- [15] Volkova E A, Popov A M and Tikhonova O V 2013 Nonlinear polarization response of a gaseous medium in the regime of atom stabilization in a strong radiation field *J. Exp. Theor. Phys.* **116** 372
- [16] Richter M, Patchkovskii S, Morales F, Smirnova O and Ivanov M 2013 The role of the Kramers–Henneberger atom in the higher-order Kerr effect *New J. Phys.* **15** 083012
- [17] Hofmann M and Brée C 2015 Femtosecond filamentation by intensity clamping at a Freeman resonance *Phys. Rev. A* **92** 013813
- [18] Kolesik M and Moloney J V 2013 Modeling and simulation techniques in extreme nonlinear optics of gaseous and condensed media *Rep. Prog. Phys.* **77** 016401
- [19] Spott A, Jaron-Becker A and Becker A 2014 Ab initio and perturbative calculations of the electric susceptibility of atomic hydrogen *Phys. Rev. A* **90** 013426
- [20] Lorin E, Chelkowski S, Zaoui E and Bandrauk A 2012 Maxwell–Schrödinger–Plasma (MASP) model for laser-molecule interactions: towards an understanding of filamentation with intense ultrashort pulses *Phys. D Nonlinear Phenom.* **241** 1059
- [21] Rensink T C, Antonsen T M, Palastro J P and Gordon D F 2014 Model for atomic dielectric response in strong, time-dependent laser fields *Phys. Rev. A* **89** 033418
- [22] Kolesik M, Brown J M, Teleki A, Jakobsen P, Moloney J V and Wright E M 2014 Metastable electronic states and nonlinear response for high-intensity optical pulses *Optica* **1** 323
- [23] Freeman R R, Bucksbaum P H, Milchberg H, Darack S, Schumacher D and Geusic M E 1987 Above-threshold ionization with subpicosecond laser pulses *Phys. Rev. Lett.* **59** 1092
- [24] Zagoya C, Goletz C-M, Grossmann F and Rost J-M 2012 An analytical approach to high harmonic generation *New J. Phys.* **14** 093050
- [25] Gavrilin M, Simbotin I and Stroe M 2008 Low-frequency atomic stabilization and dichotomy in superintense laser fields from the high-intensity high-frequency Floquet theory *Phys. Rev. A* **78** 033404
- [26] Su Q, Irving B P, Johnson C W and Eberly J H 1996 Stabilization of a one-dimensional short-range model atom in intense laser fields *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29** 5755
- [27] Goldberg A 1967 Computer-generated motion pictures of one-dimensional quantum-mechanical transmission and reflection phenomena *Am. J. Phys.* **35** 177
- [28] Press W H, Teukolsky S A, Vetterling W T and Flannery B P 1993 *Numerical Recipes in FORTRAN—The Art of Scientific Computing* 2nd edn (New York: Cambridge University Press)
- [29] Manolopoulos D E 2002 Derivation and reflection properties of a transmission-free absorbing potential *J. Chem. Phys.* **117** 9552
- [30] Popov A M, Tikhonova O V and Volkova E A 2003 Strong-field atomic stabilization: numerical simulation and analytical modelling *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **36** R125
- [31] Béjot P, Cormier E, Hertz E, Lavorel B, Kasparian J, Wolf J-P and Faucher O 2013 High-field quantum calculation reveals time-dependent negative Kerr contribution *Phys. Rev. Lett.* **110** 043902
- [32] Fedorov M V 1997 *Atomic and Free Electrons in a Strong Light Field* (Singapore: World Scientific)
- [33] Moiseyev N 1998 Quantum theory of resonances: calculating energies, widths and cross-sections by complex scaling *Phys. Rep.* **302** 212
- [34] Shirley J H 1965 Solution of the Schrödinger equation with a hamiltonian periodic in time *Phys. Rev.* **138** B979
- [35] Breuer H P, Dietz K and Holthaus M 1991 Highly excited hydrogen atoms in strong microwave fields *Z. Phys. D* **18** 239
- [36] Buchleitner A, Delande D and Gay J-C 1995 Microwave ionization of three-dimensional hydrogen atoms in a realistic numerical experiment *J. Opt. Soc. Am. B* **12** 505
- [37] Sambe H 1973 Steady states and quasienergies of a quantum-mechanical system in an oscillating field *Phys. Rev. A* **7** 2203
- [38] Kolovsky A R and Buchleitner A 2003 Floquet-bloch operator for the bose-hubbard model with static field *Phys. Rev. E* **68** 056213
- [39] Muller H G 1999 An efficient propagation scheme for the time-dependent Schrödinger equation in the velocity gauge *Laser Phys.* **9** 138
- [40] Aguilar J and Combes J 1971 A class of analytic perturbations for one-body Schrödinger hamiltonians *Commun. Math. Phys.* **22** 269

- [41] Balslev E and Combes J 1971 Spectral properties of many-body Schrödinger operators with dilatation-analytic interactions *Commun. Math. Phys.* **22** 280
- [42] Gibson G N and Freeman R R 1992 Verification of the dominant role of resonant enhancement in short-pulse multiphoton ionization *Phys. Rev. Lett.* **69** 1904
- [43] Brown J M, Wright E M, Moloney J V and Kolesik M 2012 On the relative roles of higher-order nonlinearity and ionization in ultrafast light–matter interactions *Opt. Lett.* **37** 1604
- [44] Mlejnek M, Wright E M and Moloney J V 1998 Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air *Opt. Lett.* **23** 382
- [45] Potvliege R 1998 STRFLO: a program for time-independent calculations of multiphoton processes in one-electron atomic systems: I. Quasienergy spectra and angular distributions *Comput. Phys. Commun.* **114** 42
- [46] <http://swmath.org/software/919>
- [47] Laurain A, Scheller M and Polynkin P 2014 Low-threshold bidirectional air lasing *Phys. Rev. Lett.* **113** 1
- [48] Nurhuda M, Suda A and Midorikawa K 2002 Ionization-induced high-order nonlinear susceptibility *Phys. Rev. A* **66** 1
- [49] Köhler C, Guichard R, Lorin E, Chelkowski S, Bandrauk A D, Bergéand L and Skupin S 2013 Saturation of the nonlinear refractive index in atomic gases *Phys. Rev. A* **87** 043811
- [50] Drese K and Holthaus M 1999 Floquet theory for short laser pulses *Eur. Phys. J. D—At. Mol. Opt. Phys.* **5** 119
- [51] Rigolin G, Ortiz G and Ponce V H 2008 Beyond the quantum adiabatic approximation: adiabatic perturbation theory *Phys. Rev. A* **78** 052508
- [52] Bahl A, Brown J M, Wright E M and Kolesik M 2015 Assessment of the metastable electronic state approach as a microscopically self-consistent description for the nonlinear response of atoms *Opt. Lett.* **40** 4987–90

Michael Hofmann,
*Einfluss dynamischer Resonanzen auf die Wechselwirkung optischer Femtosekunden-
Pulse mit transparenten Dielektrika,*
Technische Universität Berlin, 2016.

Dissertationsschrift zur Erlangung des akademischen Grades
DOKTOR DER NATURWISSENSCHAFTEN.

Diese Arbeit wurde mit dem Textsatzprogramm $\text{\LaTeX}$ erstellt. Das Layout
basiert auf der Vorlage *classicthesis* von André Miede.