

# Atomare Ionisationsdynamik in hochintensiven Laserfeldern

von  
Dipl.-Phys. Matthias Fritz Dammasch  
aus Berlin

von der Fakultät II - Mathematik und Naturwissenschaften  
der Technischen Universität Berlin  
zur Verleihung des akademischen Grades  
D o k t o r d e r N a t u r w i s s e n s c h a f t  
genehmigte Dissertation

Berlin 2001  
D 83

Promotionsausschuss:

Vorsitzender:

Prof. Dr. Dähne

Berichter:

Prof. Dr. Sandner

Prof. Dr. von Oppen

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 25.04.2001

# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einführung und Motivation</b>	<b>1</b>
<b>2. Theoretische Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1. Das ponderomotorische Potential . . . . .	3
2.2. Ionisations-Mechanismen . . . . .	4
2.2.1. Photoionisation . . . . .	5
2.2.2. Feldionisation . . . . .	6
2.3. Die ADK-Theorie . . . . .	8
2.4. Intensitätsverteilung im Laserfokus . . . . .	9
2.5. Mehrelektronenionisation . . . . .	11
2.5.1. Sequentielle Mehrfach-Ionisation . . . . .	12
2.5.2. Beschreibung der simultanen Mehrfach-Ionisation . . . . .	13
2.5.3. Mechanismus der simultanen Mehrfach-Ionisation . . . . .	13
<b>3. Modellrechnungen zur Ionisationsdynamik</b>	<b>21</b>
3.1. Das Simulationsprogramm . . . . .	21
3.2. Sequentielle Mehrfach-Ionisation . . . . .	26
3.3. Direkte Approximation der Tunnelbarriere (Trapez-Form) . . . . .	30
3.4. Eine empirische Formel für simultane Mehrfach-Ionisation . . . . .	35
3.5. <i>Shake</i> -artige Rechnungen mit der empirischen Formel . . . . .	37
<b>4. Experimente bei hohen Intensitäten</b>	<b>45</b>
4.1. Das 3TW-CPA-Lasersystem . . . . .	45
4.2. Die Messapparatur (Targetkammer) . . . . .	49
4.3. Ionisationsdynamik He-ähnlicher Systeme: Messungen an Calcium und Indium-I . . . . .	52
4.4. Experimente zur Ionisationsdynamik an Krypton . . . . .	57
<b>5. Experimente bei höchsten Intensitäten</b>	<b>62</b>
5.1. Das 25TW Lasersystem . . . . .	62
5.2. Eine UHV-Targetkammer für $1 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$ . . . . .	65
5.3. Messungen an Edelgasen: Xenon-VIII und heliumartiges Neon-VI . . . . .	71

5.4. Experimente an Metaldämpfen: Heliumartiges Lithium-I . . . . .	75
5.5. Ionisationsdynamik als Messtechnik: Direkte Bestimmung der Fokusin- tensität . . . . .	78
5.6. Ionisationdynamik bei schwach relativistischen Lichtintensitäten . . . . .	83
<b>6. Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>88</b>
<b>A. Veröffentlichungen im Rahmen dieser Arbeit</b>	<b>92</b>
<b>B. Lebenslauf</b>	<b>93</b>
<b>C. Danksagung</b>	<b>94</b>

# Abbildungsverzeichnis

2.1. Ionisation im Photonenbild . . . . .	6
2.2. Elektrische Feldionisation . . . . .	7
2.3. Räumliche Intensitätsverteilung im Gaußschen Laserfokus . . . . .	10
2.4. Intensitätsabhängige Ionenausbeute von Helium . . . . .	11
2.5. Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Neon und Xenon . . . . .	14
2.6. Intensitätsabhängige Ionenausbeute von Indium (Polarisationsabhängigkeit) . . . . .	15
3.1. 4-Level-Termschema des Ratengleichungssystems der Modellrechnungen . . . . .	23
3.2. Abhängigkeit der Besetzungswahrscheinlichkeiten von der Spitzenintensität (Simulation) . . . . .	24
3.3. Numerische Integration der Besetzungswahrscheinlichkeiten über das Fokusbildvolumen (Simulation) . . . . .	25
3.4. Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von $Xe^+ - Xe^{26+}$ (ADK-Modell) . . . . .	26
3.5. Überkreuzungen in den Ionenausbeuten benachbarter Ladungszustände (Simulation) . . . . .	29
3.6. Approximation der Tunnelionisation durch eine trapezförmige Potentialbarriere . . . . .	31
3.7. Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Helium und Neon (Trapez-Tunnel-Approx.) . . . . .	32
3.8. Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Krypton und Xenon (Trapez-Tunnel-Approx.) . . . . .	33
3.9. Empirische Formel: Variation von effektiver Bindungsenergie und Kernladungszahl (Neon) . . . . .	36
3.10. Sättigungsintensitäten verschiedener Atomsorten ( $F_{Sätt} = E_{ion}^2/(4Z)$ ) . . . . .	39
3.11. Modellrechnungen nach der empirischen Formel für Helium . . . . .	41
3.12. Modellrechnungen nach der empirischen Formel für Neon . . . . .	42
3.13. Modellrechnungen nach der empirischen Formel für Krypton . . . . .	43
3.14. Modellrechnungen nach der empirischen Formel für Xenon . . . . .	44
4.1. Aufbau des 3TW-CPA-Lasersystems (Vor-Auskopplung aus 10TW-System) . . . . .	46
4.2. SHG-Autokorrelationskurve des zeitlichen Intensitätsprofils der Laserpulse (3TW-System) . . . . .	47

4.3. Bestimmung des Strahldurchmessers in der Brennebene der verwendeten Fokussierlinse . . . . .	49
4.4. UHV-Targetkammer für $1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$ . . . . .	51
4.5. Isotopenverteilung von $\text{Xe}^{4+}$ im Flugzeit-Massenspektrum . . . . .	52
4.6. Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Calcium . . . . .	53
4.7. Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Indium <sup>+</sup> . . . . .	56
4.8. Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Krypton . . . . .	58
4.9. Intensitätsabhängige Ionenausbeute von metastabilem Krypton . . . . .	61
5.1. Aufbau des 25TW-CPA-Lasersystems . . . . .	63
5.2. Optischer Abschwächer zur kontrollierten Variation der Pulsenergie . . . . .	64
5.3. UHV-Targetkammer für $1 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$ . . . . .	65
5.4. CCD-Kamerabilder der Projektion der Funken-Entladung des Laserfokus in Luft . . . . .	66
5.5. SHG-Autokorrelationskurven des zeitlichen Intensitätsprofils der Laserpulse (25TW-System) . . . . .	68
5.6. Untersuchung des Laserfokus mittels einer verschiebbaren Blende . . . . .	70
5.7. Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Xe-VIII . . . . .	71
5.8. Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von heliumartigem Ne-VI . . . . .	73
5.9. Flugzeit-Spektrum von Lithium-Metalldampf . . . . .	75
5.10. Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Lithium <sup>+</sup> . . . . .	76
5.11. Flugzeit-Spektrum von Xenon-Gas: Detektion von $\text{Xe}^{20+}$ . . . . .	79
5.12. Bestimmung der Spitzenintensität im Laserfokus . . . . .	80
5.13. Elektron-Trajektorien bei relativistischen Lichtintensitäten . . . . .	84
5.14. e2e-Stoßquerschnitte von $\text{Xe}^{n+}$ -Ionen . . . . .	85

# Tabellenverzeichnis

3.1. Laserparameter für die Modellrechnungen . . . . .	22
3.2. Ionisationspotentiale ausgewählter Elemente . . . . .	40
5.1. Relativistische Ionisationsdynamik: Anfangs-Querimpulse des Elektron- Wellenpakets für eine Rückkehr zum $\text{Xe}^{20+}$ -Ion bei $I = 1.5 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$ .	86



# 1. Einführung und Motivation

Das gerade zu Ende gegangene 20. Jahrhundert war aus dem Blickwinkel der Physik das Jahrhundert der Quantentheorie. Die erstmals 1900 von Max Planck in seiner Formel zur Beschreibung des spektralen Emissionsverhaltens eines thermischen Körpers postulierte Quantisierung der Energie war der Anfang einer Revolution des wissenschaftlichen Weltbildes. Die von Albert Einstein aufgestellte Lichtquantenhypothese zur Erklärung des photoelektrischen Effekts war der nächste Meilenstein auf dem Weg in eine von unteilbaren Partikeln zusammengesetzte neue Welt. Niels Bohrs Atommodell und Werner Heisenbergs mathematische Beschreibungen bedeuteten den endgültigen Durchbruch für diese neuartige Sicht der mikroskopischen Natur der Dinge.

Eine mit der Quantenphysik untrennbar verbundene Erfolgsgeschichte dieses vergangenen Jahrhunderts war die Entwicklung einer völlig neuartigen, in der Natur nicht vorkommenden Lichtquelle, dem Laser. Mit dem Einsatz von *light amplification by stimulated emission of radiation* wurden vor allem in der zweiten Hälfte des 20. Jahrhunderts die bis dahin gesammelten Erkenntnisse auf dem Gebiet der Wechselwirkung von Licht und Materie um ein Vielfaches erweitert. Der Fortschritt des Wissens auf diesem Teilgebiet der Atomphysik war zudem fast immer mit einer technischen Verbesserung der aktuell zur Verfügung stehenden Laserquellen gekoppelt.

Durch die Einführung der *Chirped-Pulse-Amplification*-Technik (CPA) vor gut 15 Jahren ist es mittlerweile möglich geworden, gepulstes Laserlicht mit fokussierten Spitzenintensitäten bis  $10^{20}$  W/cm<sup>2</sup> im Experiment bereitzustellen. Die damit verbundene elektrische Feldstärke dieser ultrakurzen, höchstintensiven Lichtpulse beträgt das bis zu 100-fache der Feldstärke der Coulomb-Bindung des Elektrons auf der 1. Bohrschen Bahn im Wasserstoff. Freie Elektronen werden in solchen elektrischen Wechselfeldern auf relativistische Geschwindigkeiten beschleunigt, ihre kinetische Energie erreicht mit bis zu 10 MeV ein Vielfaches der Elektron-Ruhemasse. Der mit diesen Intensitäten verbundene extreme Lichtdruck übersteigt die 1 Gbar-Grenze. Die bei der Wechselwirkung von Materie mit diesem Laserlicht erzeugten Ionen und Elektronen besitzen Energien bis in den MeV-Bereich; die strahlende Rekombination dieser Teilchen resultiert in hochenergetischen Photonen bis hin zu Röntgenstrahlung mit einer Wellenlänge von 3 nm.

An der Schwelle zum 21. Jahrhundert zeichnet sich somit eine ganze Reihe neuer Einsatzgebiete dieser Klasse von Lasern ab: Teilchenbeschleunigung mit Laserlicht auf kleinstem Raum anstelle von kilometerlangen Beschleunigeranlagen, die mit Lichtpul-

sen kontrolliert gezündete Kernfusion (*Fast-Ignitor*-Schema), die Entwicklung kohärenter Strahlungsquellen mit immer kürzerer Wellenlänge bis hin zum Röntgenlaser.

All diese in naher Zukunft realisierbaren Projekte können aber nur dann Erfolg versprechen, wenn sie sich unmittelbar eines gleichermaßen fortschreitenden Kenntnisstandes in der Atomphysik bedienen können, und sie damit in die Lage versetzt werden, bei der Umsetzung der eigenen Anwendungen die atomphysikalischen Gesetzmäßigkeiten entsprechend zu berücksichtigen. Unverzichtbarer Bestandteil auf dem Weg in diese neuen Einsatzgebiete ist und bleibt also ein umfassendes, grundlegendes Verständnis der elementaren Wechselwirkungsprozesse von Materie mit solch hochintensiver kohärenter elektromagnetischer Strahlung. Die Anwendung von Laserlicht mit immer höherer Intensität hat dabei in den letzten 25 Jahren zur Entdeckung einer Reihe von unerwarteten Phänomenen bei der Wechselwirkung von Lichtquanten mit Atomen geführt, die nicht mehr mit der in der Quantentheorie so erfolgreichen Störungsrechnung vollständig korrekt beschrieben werden können: Ionisation über der Schwelle (*ATI*), die Generation Höherer Harmonischer (*HHG*) und auch die Erzeugung mehrfach geladener Ionen mit unerwartet hohen Ausbeuten. Das letztgenannte Phänomen ist Gegenstand der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen. Da bis zum heutigen Tage keine vollständige Theorie zur korrekten Beschreibung aller bei diesem Phänomen auftretenden Effekte existiert, umfassen die hier vorgestellten Ergebnisse sowohl numerische Simulationen der von anderen Arbeitsgruppen aufgenommenen Messdaten als auch eigene Experimente zur Vermessung bis dahin nicht zugänglicher atomarer, bzw. ionischer Mehrelektronensysteme.

Die Simulationen beruhen dabei auf einer empirischen Formel, mit der in Abänderung einer bereits etablierten, jedoch zu kurz greifenden theoretischen Beschreibung bei vergleichsweise geringem Aufwand an Rechenleistung eine bemerkenswert gute Übereinstimmung mit den experimentellen Resultaten erzielt wird.

In den Experimenten wurden an zwei verschiedenen Messapparaturen sowohl im Intensitätsbereich unterhalb von  $1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  als auch bei Lichtintensitäten bis nahe  $1 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$  atomare und ionische Mehrelektronensysteme auf ihr intensitätsabhängiges Ionisationsverhalten hin untersucht. Eine besondere Bedeutung kommt dabei der Vermessung von Systemen mit heliumartiger Elektronenkonfiguration zu, da hier die Ionisationsdynamik an einem überschaubar auf zwei Elektronen reduzierten, stark korrelierten fundamentalen System besonders gut studiert werden kann. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden daher neben nicht helium-ähnlichem Krypton und Xenon<sup>8+</sup> vor allem die Ionenausbeuten von Indium<sup>+</sup>, Neon<sup>6+</sup> und Lithium<sup>+</sup> erstmals experimentell untersucht. Desweiteren wurden im Zuge der Charakterisierung der zweiten Messapparatur die Erkenntnisse aus der Ionisationsdynamik messtechnisch eingesetzt, um eine direkte Bestimmung der erzielten Spitzenintensität im Strahlfokus durchzuführen. Dabei wurden erste Anzeichen von relativistischen Effekten auf die Dynamik des Ionisationsprozesses nachgewiesen, die bei Lichtintensitäten oberhalb von  $1 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$  den Mechanismus der Mehrelektronenionisation zunehmend beeinflussen.

## 2. Theoretische Grundlagen

Die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Experimente sind durch den Umstand charakterisiert, dass die elektrische Feldstärke des mit den Atomen wechselwirkenden Laserlichts in die Größenordnung der inneratomaren Coulomb-Feldstärke der Valenzelektronen reicht und somit nicht mehr als klein im Sinne der Störungsrechnung angesehen werden kann. Dies hat eine Reihe von Phänomenen zur Folge, die die Dynamik des Ionisationsprozesses entscheidend prägen. Im folgenden Kapitel werden die zum Verständnis der späteren theoretischen und experimentellen Resultate notwendigen Grundlagen kurz dargestellt.

### 2.1. Das ponderomotorische Potential

Beim Einsatz hochintensiver Lichtpulse muß der Tatsache Rechnung getragen werden, dass die an der Ionisation beteiligten Atome, oder genauer Elektronen und Ionenrümpfe, zu jedem Zeitpunkt des Prozesses die elektromagnetischen Kräfte des anwesenden Lichtfeldes spüren und sich dementsprechend verhalten. Daher ist es sinnvoll, zuallererst die Bewegung eines Elektrons in einem zeitabhängigen starken Lichtfeld zu untersuchen. Ein freies Elektron (Ladung  $qm$ , Masse  $m$ , Geschwindigkeit  $\vec{v}$ ) erfährt im elektromagnetischen Feld eine Kraftwirkung:

$$\vec{F} = q \left( \vec{E} + \vec{v} \times \vec{B} \right) \quad \text{Lorentzkraft.} \quad (2.1)$$

Im nichtrelativistischen Grenzfall ( $|\vec{v}| \ll c$ ) lässt sich der magnetische Term vernachlässigen, da er um das  $|\vec{v}|/c$ -fache kleiner ist als der elektrische Anteil. Für ein linear polarisiertes periodisches Laser-Lichtfeld in der allgemeinen Form

$$\vec{E}(\vec{x}, t) = \vec{E}_0 \sin(\vec{k}\vec{x} - \omega t + \phi) \quad (2.2)$$

ergibt sich dann für die über eine Schwingungsperiode zeitlich gemittelte kinetische Energie des Elektrons ( $\vec{v}(t_0) = 0$ ):

$$\langle \overline{E_{kin}} \rangle_t = \frac{\omega}{2\pi} \int_{t_0}^{t_0 + \frac{2\pi}{\omega}} E_{kin} dt = \frac{q^2 |\vec{E}_0|^2}{4m\omega^2} =: U_{pond} \propto I\lambda^2 \quad . \quad (2.3)$$

Diese gemittelte kinetische Energie nennt man auch das ponderomotorische Potential  $U_{pond}$ . Das Elektron führt also in Folge der oszillierenden Lorentzkraft eine Zitterbewegung (*Quiver-Motion*) im Lichtfeld aus, deren Energieinhalt als zusätzliches intensitätsabhängiges Potential bei der Elektronenbewegung zu berücksichtigen ist. Im Falle eines räumlich inhomogenen, also ortsabhängigen Laser-Lichtfeldes kann diese Zitterbewegung in eine Netto-Driftbewegung transformiert werden, da das Elektron durch den örtlichen Intensitätsgradienten eine zeitgemittelte ponderomotive Kraft  $\vec{F} = -\nabla U_{pond}$  erfährt, die es in Bereiche niedriger Intensität treibt [1]. Welchen Beitrag das ponderomotive Potential zur Endenergie der Elektronen liefert, hängt daher außer von der räumlichen Ausdehnung (Strahldurchmesser) des Lichtfeldes auch entscheidend von der Pulsdauer des ionisierenden Laserlichts ab. Man unterscheidet 3 Bereiche [2]:

1. Langpulsregime: Die Pulsdauer ist für das Elektron groß genug, um die am Freisetzungsort gewonnene ponderomotorische potentielle Energie der Zitterbewegung vollständig in Bewegungsenergie umzusetzen und aus der Wechselwirkungszone herauszudriften.
2. Übergangsbereich: Das zum Zeitpunkt  $t_0$  freigesetzte Elektron erfährt während der Wechselwirkungszeit  $\tau_{ww}$  einen teilweisen Energieübertrag von der Zitter- in die Driftbewegung von  $\int_{t_0}^{t_0+\tau_{ww}} \frac{\partial}{\partial t} U_{pond}(\vec{x}(t), t) dt$ .
3. Kurzpulsregime: Die Pulsdauer ist zu klein ( $\tau_{ww} = \tau_p \leq 10^{-12} s$ ), als dass sich das freie Elektron vom Entstehungsort merklich entfernen kann. Es findet praktisch kein Energieübertrag statt.

## 2.2. Ionisations-Mechanismen

Die Art und Weise, wie sich ein Ionisationsprozess am zweckmäßigsten beschreiben lässt, ist entscheidend von der Stärke des beteiligten Lichtfeldes bestimmt. Als Kriterium, welches Modell sich für eine gegebene Situation am besten eignet, kann das Verhältnis des atomaren Ionisationspotentials  $E_{ion}$  zur Photonenenergie  $\hbar\omega$  und zum ponderomotorischen Potential  $U_{pond}$  herangezogen werden:

1.  $E_{ion} > \hbar\omega \gg U_{pond}$  : Regime der nichtlinearen Optik. Das angreifende Lichtfeld kann als Photonenstrom aufgefasst werden. Der Energieübertrag auf das atomare System erfolgt durch Absorption einzelner Lichtquanten (Ionisation im Photonenbild). Gültigkeitsbereich der Störungsrechnung zur Behandlung nichtresonanter Prozesse.
2.  $E_{ion} > U_{pond} > \hbar\omega$  : Bereich der Multiphoton-Ionisation über die Ionisationsschwelle hinaus (ATI). Störungsrechnung beginnt zu versagen.

3.  $U_{pond} > E_{ion} \gg \hbar\omega$  : Regime der elektrischen Feldionisation. Das Lichtfeld wird durch seine elektrische Feldstärke charakterisiert. Der Energieübertrag erfolgt unmittelbar durch elektromagnetische Krafteinwirkung und nicht mehr durch Photonenabsorption. Störungsrechnung inadäquat.

Als Maßstab für den Übergang zwischen Multiphoton-Ionisation und quasistatischer elektrischer Feldionisation wird vielfach auch der Keldysh-Parameter [3] herangezogen:

$$\gamma = \sqrt{\frac{E_{ion}}{2U_{pond}}} = \frac{\omega_{laser}}{\omega_{tunnel}} \propto \frac{\tau_{tunnel}}{T_{laser}} \quad . \quad (2.4)$$

Für  $\gamma \ll 1$  ist die Beschreibung der Ionisation durch Feldionisation angemessen, für  $\gamma \gg 1$  ist die Ionisation im Photonenbild besser erfasst.

### 2.2.1. Photoionisation

Die Freisetzung eines Elektrons aus dem gebundenen Zustand mit einem Atom (oder Ion) in das Kontinuum ist nur möglich, wenn das Elektron genügend Energie aufnehmen kann, um das attraktive Potential des Kerns zu überwinden. Daher weisen die Energiespektren der Ionisationsprodukte ein typisches Schwellenverhalten auf, und aus der Verteilung der kinetischen Energie der ausserhalb der Wechselwirkungszone registrierten Elektronen lassen sich Rückschlüsse sowohl auf die innere Struktur des ionisierten atomaren Systems als auch auf die Eigenschaften des ionisierenden Laserlichts ziehen. Die resultierende kinetische Energie der detektierten Elektronen bestimmt sich aus der Differenz der absorbierten Photonenenergie und dem effektiven Ionisationspotential, das durch den Einfluss des äußeren Feldes vom feldfreien Ionisationspotential  $E_{ion}$  deutlich abweichen kann. Es gilt:

$$E_{kin}(I) = n\hbar\omega - [(E_{ion} + U_{pond}(I)) - E_g(I)] \quad . \quad (2.5)$$

Das intensive Lichtfeld bewirkt einerseits eine Verschiebung der energetischen Lage des Ausgangszustandes  $E_g$  (*AC-Stark-Shift*), andererseits erhöht sich die Ionisationsschwelle durch den Beitrag des ponderomotiven Potentials  $U_{pond}$ .

Die schon bei allerniedrigsten Intensitäten mögliche resonante Ein-Photonen-Absorption ( $\hbar\omega > E_{ion}$  - *photoelektrischer Effekt* [4]) lässt sich mit Störungsrechnung erster Ordnung beschreiben und führt zu Fermis *goldener Regel* [5]. Für den Fall  $\hbar\omega < E_{ion}$  ist mehr als ein Photon zur Freisetzung des Elektrons vonnöten, man spricht von Multiphoton-Ionisation (*MPI*). Hierzu muss innerhalb der Lebensdauer der realen oder virtuellen Zwischenzustände ein weiteres Photon aus dem Laserfeld absorbiert werden. Die Lebensdauer der virtuellen Zwischenzustände bestimmt sich nach der Unschärferelation zu  $\Delta E \Delta t \geq \hbar$ ; in diesem Fall bezeichnet  $\Delta E$  den Energieabstand zum nächstgelegenen

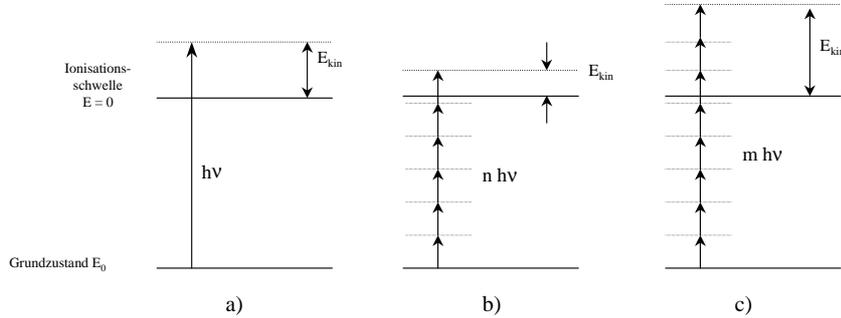


Abbildung 2.1.: Ionisationsmechanismen im Photonenbild: a) resonante Ein-Photon-Ionisation, b) nichtresonante Multiphoton-Ionisation und c) Ionisation oberhalb der Schwelle (ATI).

realen Energieniveau, weshalb die typische Lebensdauer virtueller Zwischenzustände unterhalb 1fs liegt. Deshalb ist die nicht-resonante Mehr-Photonenionisation nur in intensiveren Lichtfeldern möglich. Für kleine Intensitäten kann die Ionisationsrate für einen n-Photonen-Prozess in Störungsrechnung n-ter Ordnung berechnet werden zu [6]:

$$R(I) = \sigma_n I^n \quad , \quad \sigma_n : \text{generalisierter Wirkungsquerschnitt.} \quad (2.6)$$

Daraus folgt, dass die gemessenen Ionenausbeuten aus einem Multiphoton-Prozess n-ter Ordnung mit  $I^n$  ansteigen [7]. Aufgrund der intensitätsabhängigen Lage der Energieniveaus und der Ionisationsschwelle kann es passieren, dass sich mit zunehmender Lichtintensität ein reales Energieniveau in den Bereich eines für die MPI notwendigen Zwischen-niveaus verschiebt. Diese durch AC-Starkverschiebung auftretenden Resonanzen können die Ionisationsrate stark erhöhen. Andererseits bewirkt die mit  $U_{pond}$  wachsende Ionisationsschwelle, dass mit zunehmender Intensität immer mehr Photonen zur Ionisation eines Elektrons aus dem betreffenden Anfangszustand absorbiert werden müssen. Dies bewirkt eine Änderung im Anstieg der gemessenen Ionenausbeuten von  $I^n$  auf  $I^{n+1}$ . Bei noch höheren Intensitäten kommt es schliesslich zu deutlichen Abweichungen der Ionisationsraten von 2.6, da die Elektronen mehr Photonen aus dem Lichtfeld absorbieren als für die Ionisation nötig: *Absorption oberhalb der Ionisationsschwelle (ATI)*[8][9][10].

### 2.2.2. Feldionisation

Bei noch höheren Lichtintensitäten beeinflusst die elektrische Feldstärke des Lichts in zunehmendem Maße das Coulomb-Potential der atomaren Bindung derart, dass die schwach gebundenen Elektronen im resultierenden Effektiv-Potential bereits energetisch

oberhalb der Potentialbarriere liegen und direkt ionisieren können. Die tieferliegenden Elektronenzustände registrieren dagegen eine nur noch endliche Potentialbarriere und haben so die Möglichkeit durch Tunnelionisation in das Kontinuum zu entkommen (s. Abb. 2.2).

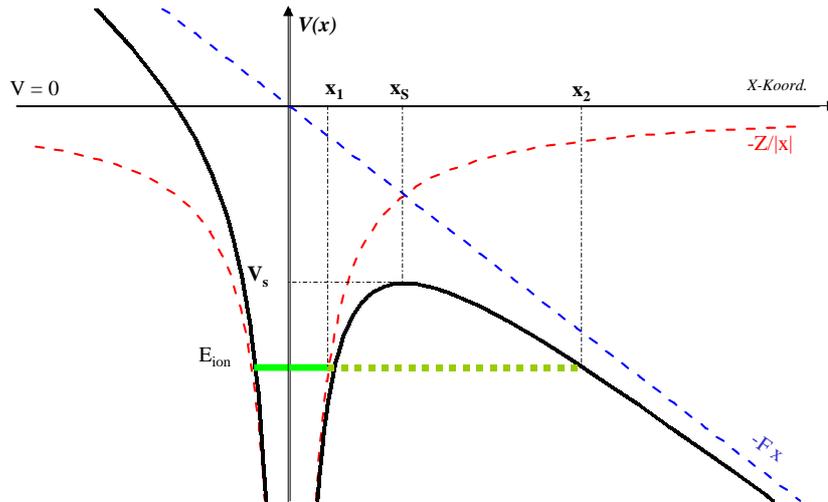


Abbildung 2.2.: Prinzip der elektrischen Feldionisation von Elektronen (näheres siehe Text).

Für die Ausdehnung der effektiven Potentialbarriere (in atomaren Einheiten) gilt:

$$\text{kombiniertes Potential} \quad V_{eff}(x, t) = -\frac{Z}{x} - F(t) x \quad , \quad x > 0 \quad (2.7)$$

$$\text{Sattelpunkt bei} \quad \frac{\partial}{\partial x} V_{eff}(x, t) = 0 \quad \Rightarrow \quad x_S = \sqrt{\frac{Z}{F(t)}} \quad (2.8)$$

$$\text{Barrierrhöhe} \quad V_S := V_{eff}(x_S) = -\sqrt{4ZF(t)} \quad (2.9)$$

$$\begin{aligned} \text{Barrierrbreite} \quad V_{eff}(x, t) = E_{ion} &\iff -x^2 - \frac{E_{ion}}{F(t)} x + \frac{Z}{F(t)} = 0 \\ \implies x_{1,2} &= \frac{E_{ion} \pm \sqrt{E_{ion}^2 - 4ZF(t)}}{2F(t)} \end{aligned} \quad (2.10)$$

Diejenige Feldstärke, bei der das Maximum des effektiven Potentials gerade den Wert der Bindungsenergie des Elektrons erreicht, bezeichnet man als Sättigungsfeldstärke:

$$V_{eff}(x_S) = -E_{ion} \iff \sqrt{4ZF} = E_{ion} \iff F =: F_{Sätt} = \frac{E_{ion}^2}{4Z} \quad . \quad (2.11)$$

Sie kennzeichnet den Übergang von der Tunnelionisation zur Ionisation oberhalb der Potentialbarriere (*Over-the-barrier-ionization*) des in diesem Fall quasi-freien Elektrons.

Die durch den Keldysh-Parameter  $\gamma$  (2.4) beschriebene Relation lässt sich auch als Frequenzverhältnis darstellen, das eine quantitative Interpretation des Ionisationsmechanismus im quasiklassischen Bild erlaubt: Ist die (halbe) Periodendauer einer Schwingung des Laserfeldes länger als die Zeit, die ein Elektron (als Wellenpaket oder klassisches Partikel) benötigt, um die durch das äußere Lichtfeld auf endliches Maß reduzierte Potentialbarriere zu durchtunneln, so wird der Ionisationsprozess durch Feldionisation geprägt sein. Andernfalls reicht die für den Tunnelprozess benötigte Zeit nicht aus, um vor der Richtungskehr des äußeren Feldes die Potentialbarriere vollständig zu durchlaufen, und eine Freisetzung in das Kontinuum ist nur durch Absorption einer genügend großen Anzahl von Photonen erreichbar.

### 2.3. Die ADK-Theorie

In einem Ansatz von Ammosov, Delone & Krainov [11] lässt sich die Ionisationsrate komplexer Atome und Ionen in einem oszillierenden äußeren elektrischen Wechselfeld im Rahmen einer quasi-klassischen AC-Tunnel-Theorie beschreiben (*ADK-Theorie*). Darin bestimmt sich die Ionisationswahrscheinlichkeit  $w_{ADK}$  (in atomaren Einheiten) für einen Anfangszustand  $(n^*, l, m)$  zu:

$$w_{ADK} = \omega_A C_{n^*,l}^2 f_{l,m} E_{ion} \exp \left[ -2 \frac{(2 E_{ion})^{3/2}}{3 F_0} \right] \left( \frac{3 F_0}{\pi (2 E_{ion})^{3/2}} \right)^{1/2} \left( \frac{2 (2 E_{ion})^{3/2}}{F_0} \right)^{2n^* - |m| - 1} \quad (2.12)$$

mit

$$C_{n^*,l} = \frac{1}{2\pi n^*} \left( \frac{2 \exp(1)}{n^*} \right)^{n^*} \quad (2.13)$$

$$f_{l,m} = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|} (|m|)! (l-|m|)!} \quad (2.14)$$

und

$\omega_A$ :	atomare Einheit der Frequenz	(4.134 $10^{16}$ Hz)
$F_0$ :	elektrische Feldstärke (in atomaren Einheiten)	( $F_A = 5.142 \cdot 10^9$ V/cm)
$E_{ion}$ :	feldfreie Bindungsenergie des Anfangszustandes	( $E_{ion,A} = 27.2116$ eV)
$n^*$ :	effektive Hauptquantenzahl	$n^* = \frac{Z}{\sqrt{2 E_{ion}}}$ (2.15)

Die in Experimenten an Edelgasen mit ps-Laserpulsen bei  $\lambda \geq 1 \mu\text{m}$  beobachteten Ionenausbeuten lassen sich damit in guter Übereinstimmung nachmodellieren [12][13][14].

## 2.4. Intensitätsverteilung im Laserfokus

Die Erzeugung höchster Intensitäten ist mit den heutigen technischen Mitteln nur durch die Verwendung gepulster, fokussierter Laserstrahlung möglich. Dies hat zur Folge, dass die Feldstärke und damit die Intensität des Laserlichts im Wechselwirkungsgebiet der Atome eine räumlich stark inhomogene Verteilung besitzt. Für die Beschreibung der räumlichen Eigenschaften des Laserlichts wird der Laserstrahl als TEM<sub>00</sub> – Mode angenommen, d. h. er besitzt ein radial Gauß-förmiges Intensitätsprofil. Auf diese Weise lässt sich die Ausbreitung des Laserstrahls im Fokusbereich mit Hilfe der Gaußschen Strahlenoptik berechnen. Die Intensitätsverteilung eines fokussierten, zeitlich und räumlich Gauß-förmigen Laserstrahls in Zylinderkoordinaten [15] lautet

$$I(r, z, t) = I_{max} \left( \frac{w_0}{w(z)} \right)^2 \exp \left[ -2 \left( \frac{r}{w(z)} \right)^2 \right] \exp \left[ -\frac{t - z/c}{\tau_p^2} \right] . \quad (2.16)$$

Hierbei bezeichnet  $r$  die Radialkoordinate senkrecht zur optischen Achse ( $z$ -Achse). Der Strahlradius  $w(z)$  bemisst jenen Abstand von der optischen Achse, bei dem die Intensität auf das  $1/e^2$ -fache des Maximums abgefallen ist. Seine Abhängigkeit von der Ausbreitungsrichtung und seiner Strahltaile  $w_0 := w(z = 0)$  beträgt

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left( \frac{z\lambda}{\pi w_0^2} \right)^2} . \quad (2.17)$$

Diejenige Länge, auf der der Strahlradius sich auf das  $\sqrt{2}$ -fache seiner Taille aufweitet, bezeichnet man als Rayleigh-Länge  $z_{Rayleigh} = \pi w_0^2 / \lambda$ .

Aufgrund der Zylindersymmetrie entlang der optischen Achse sowie der Spiegelsymmetrie bzgl. der Fokusebene ( $z=0$ ) gilt für das Volumen, innerhalb dessen die örtliche Intensität oberhalb eines gewissen Schwellenwertes  $I_{min}$  liegt

$$V(I_{max} > I > I_{min}) =: V(I) = 2\pi \int_0^{z_{max}} r^2(I, z) dz . \quad (2.18)$$

Mit  $r(I, z)$  nach 2.16 und der Randbedingung

$$I(r = 0, z = z_{max}) = I_{min} \implies z_{max} = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \sqrt{-1 + \frac{I_{max}}{I_{min}}} \quad (2.19)$$

ergibt sich aus der Integration 2.18

$$V(I) = \frac{2\pi^2 w_0^4}{9 I_{min} \lambda} \left( \sqrt{-1 + \frac{I_{max}}{I_{min}}} (I_{max} + 5I_{min}) - 6I_{min} \arctan \sqrt{-1 + \frac{I_{max}}{I_{min}}} \right) , \quad (2.20)$$

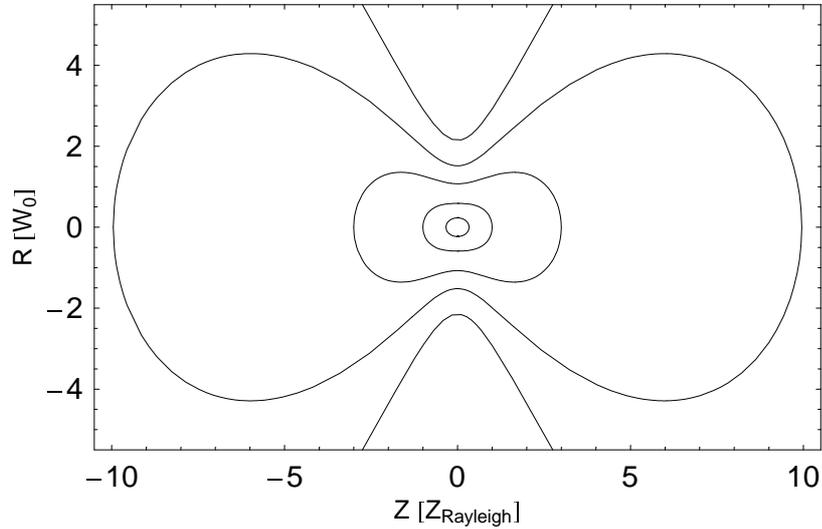


Abbildung 2.3.: Räumliche Intensitätsverteilung im Gaußschen Laserfokus. Eingezeichnet sind die Iso-Intensitätslinien für das 0,9/0,5/0,1/0,01/0,0001-fache der Spitzenintensität im Fokuszentrum zum Zeitpunkt des Pulsmaximums.

was sich direkt zu der aus der Literatur [16] bekannten Formel

$$V(I) = \frac{\pi^2 w_0^4}{\lambda} \left( \frac{2}{9} \mathcal{I}^3 + \frac{4}{3} \mathcal{I} - \frac{4}{3} \arctan \mathcal{I} \right) \quad \text{mit } \mathcal{I} = \sqrt{-1 + \frac{I_{max}}{I_{min}}} \quad (2.21)$$

vereinfachen lässt.

## 2.5. Mehrelektronenionisation

Betrachtet man die im realen Experiment erzielten Ionenausbeuten, so registriert man eine Vielzahl von produzierten Ladungszuständen. Die Einwirkung fokussierten, hochintensiven Laserlichts auf z. B. ein Gas-Ensemble von Atomen resultiert in einem spezifischen Anzahl-Verhältnis verschieden mehrfach ionisierter Gasteilchen nach Abklingen des fs-Lichtpulses. Dabei stellt sich die Frage, in welcher zeitlichen Abfolge die Elektronen zur Produktion eines n-fach geladenen ionischen Endzustandes freigesetzt werden.

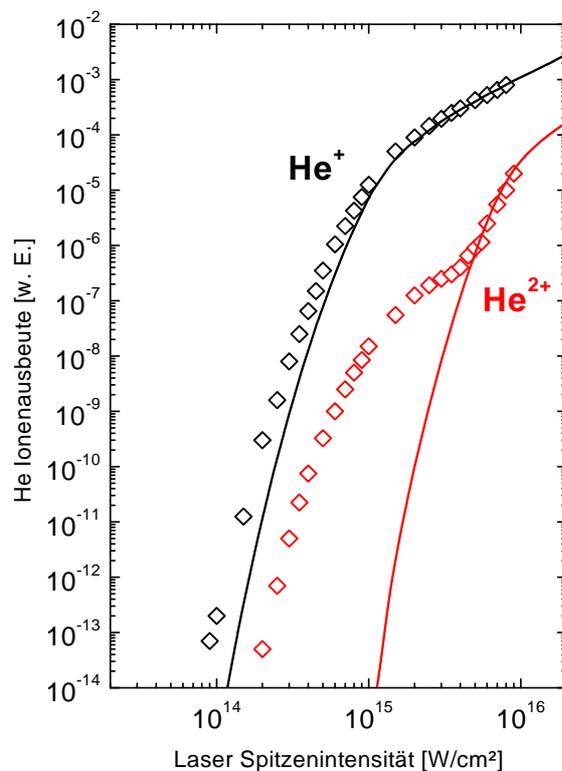
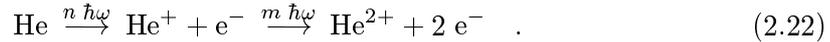


Abbildung 2.4.: Intensitätsabhängige Ionenausbeute von Helium. Die Daten wurden aus einer Messung von Walker et. al. [17] entnommen ( $\lambda = 780\text{nm}$ ,  $w_0 = 8\mu\text{m}$ ,  $\tau_{\text{HWHM}} = 100\text{fs}$ ). Im Vergleich dazu die nach dem sequentiellen Modell zur Mehrfach-Ionisation (ADK) erwarteten Ionenausbeuten (ausgezogene Linien).

### 2.5.1. Sequentielle Mehrfach-Ionisation

Auf Grundlage der bei der Ein-Elektronen-Ionisation so erfolgreichen ADK-Theorie [11] wird zunächst von einem rein sequentiellen Modell zur Erzeugung höherer Ladungszustände ausgegangen. Dabei erfolgt die Ionisation der einzelnen Elektronen zeitlich nacheinander, unabhängig voneinander:



Die Abb. 2.4 zeigt die von Walker et al. [17] gemessenen integralen Ionenausbeuten von  $\text{He}^+$  und  $\text{He}^{2+}$  in Abhängigkeit von der Intensität der Laserlichtpulse. Die Messdaten belegen eindrucksvoll eine Abweichung von diesem nach ihren Autoren benannten ADK-Modell. Die Anzahl der ein- u. zweifach ionisierten He-Atome steigt zunächst bei wachsendem Verhältnis exponentiell mit der Lichtintensität an ( $I < 2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  :  $\text{He}^{2+}/\text{He}^+ = 2 \cdot 10^{-4} \rightarrow 2 \cdot 10^{-3}$ ). Sodann nimmt die Zuwachsrate des  $\text{He}^+$ -Signals ab und steigt oberhalb von  $I \geq 2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  mit  $\propto I^{3/2}$  weiter an. Dieses Verhalten bezeichnet man als Volumensättigung der Ionenausbeute. Alle He-Atome im Bereich des Laserfokus werden innerhalb der Laserpulsdauer restlos ionisiert, so dass bei weiterer Zunahme der Spitzenintensität der Zuwachs an produzierten  $\text{He}^+$ -Ionen direkt an die Ausweitung des Ionisationsvolumens gekoppelt ist. Die Größe der Volumenschale, in der die für die Produktion von  $\text{He}^+$  notwendige Schwellenintensität übertroffen wird, gleichzeitig aber diejenige für  $\text{He}^{2+}$  nicht erreicht wird, wächst mit zunehmender Spitzenintensität wie der führende Term in der Volumenformel für den Gaußschen Laserfokus (2.21).

$$V \left( \frac{I_{max}}{I_{min}} \gg 1 \right) \approx \frac{\pi^2 w_0^4}{\lambda} \left( \frac{2}{9} \left( \frac{I_{max}}{I_{min}} \right)^{3/2} + \frac{4}{3} \left( \frac{I_{max}}{I_{min}} \right)^{1/2} - \frac{4}{3} \arctan \left[ \left( \frac{I_{max}}{I_{min}} \right)^{1/2} \right] \right) \quad (2.23)$$

Die Abweichung der Messdaten für  $\text{He}^{2+}$  von den theoretischen Erwartungen des ADK-Modells wird als Auftreten einer nicht-sequentuellen, simultanen Doppelionisation gedeutet:



Erst oberhalb der Sättigungsintensität von  $\text{He}^+$  knickt die  $\text{He}^{2+}$ -Ausbeute ein und schwenkt auf die vom ADK-Modell vorhergesagten Quantitäten ein (Ausbildung einer Schulter, bzw. eines Knies). Zu diesem Zeitpunkt sind im Volumenbereich, in dem die Schwellenintensität für  $\text{He}^{2+}$  überschritten wird, nur noch  $\text{He}^+$ -Ionen und keine neutralen He-Atome mehr vorhanden. Folglich kann  $\text{He}^{2+}$  nur noch durch sequentielle Ionisation von  $\text{He}^+$  generiert werden, was in guter Übereinstimmung mit den theoretischen Vorhersagen geschieht. Der Intensitätsbereich der Sättigung des  $\text{He}^{2+}$ -Signals liegt oberhalb von  $1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  und damit ausserhalb des Messdatenbereichs.

Trotz des Versagens bei der Beschreibung der simultanen Mehrfach-Ionisation gilt das ADK-Modell immer noch als Referenz-Theorie zur Vorhersage von Ionenausbeuten. Gerade die Verlässlichkeit bei der Bestimmung der Ionenausbeute der jeweils ersten

Ionisationsstufe sowie die korrekte Beschreibung des zwangsläufig sequentiellen Ionisationsverhaltens der höheren Ladungszustände infolge einsetzender Volumensättigung macht es bis heute zu einem unverzichtbaren Bestandteil in der theoretischen Beschreibung durch Feldemission dominierter atomarer Ionisationsdynamik.

### 2.5.2. Beschreibung der simultanen Mehrfach-Ionisation

Das Phänomen der Abweichung gemessener Ionenausbeuten von den auf sequentieller Mehrfach-Ionisation beruhenden theoretischen Vorhersagen ist durch die Experimente anderer Arbeitsgruppen ebenfalls an Edelgasen (Xenon [18], Krypton [18][19], Argon [20][18], Neon [21][22][18]), aber auch z. B. für Indium<sup>+</sup> [23] bestätigt worden. Die Abbildungen 2.5 und 2.6 zeigen stellvertretend eine Auswahl der Ergebnisse, jeweils im Vergleich mit den nach ADK-Theorie modellierten zu erwartenden Messsignalen.

Dabei zeigt sich, dass die beobachtete Überhöhung der Ionenausbeute infolge nicht-sequentieller Prozesse bei Helium am stärksten ausgeprägt ist, aber sowohl bei nicht-heliumartigen Systemen (Neon, Xenon), als auch bei heliumartigen ionischen Systemen (Indium) klar hervortritt.

Element	Konfiguration	Intensitätsbereich	Verhältnis
Helium	1s <sup>2</sup>	1 10 <sup>15</sup> W/cm <sup>2</sup>	He <sub>Exp</sub> <sup>2+</sup> /He <sub>ADK</sub> <sup>2+</sup> = 10 <sup>6</sup>
Neon	1s <sup>2</sup> 2s <sup>2</sup> 2p <sup>6</sup>	6 10 <sup>14</sup> W/cm <sup>2</sup>	Ne <sub>Exp</sub> <sup>2+</sup> /Ne <sub>ADK</sub> <sup>2+</sup> = 10 <sup>5</sup>
Indium	[Kr] 4d <sup>10</sup> 5s <sup>2</sup> 5p	3 10 <sup>14</sup> W/cm <sup>2</sup>	In <sub>Exp</sub> <sup>3+</sup> /In <sub>ADK</sub> <sup>3+</sup> = 50
Xenon	[Kr] 4d <sup>10</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup>	8 10 <sup>13</sup> W/cm <sup>2</sup>	Xe <sub>Exp</sub> <sup>2+</sup> /Xe <sub>ADK</sub> <sup>2+</sup> = 5 10 <sup>5</sup>

Zudem wird nicht nur simultane Doppelionisation beobachtet. Die Ausbeuten der höheren Ladungszustände weisen in der Tat ein mehrfaches Einknicken in Richtung der ADK-Vorhersagen auf, was jedesmal mit dem Erreichen der Volumensättigung eines niedrigeren Ladungszustandes einhergeht. Dies lässt auf simultane Mehrfach-Ionisation höherer Ordnung schließen. Eine weitere Eigenschaft dieses Phänomens ist seine eindeutige Polarisationsabhängigkeit. Die Abweichungen von rein sequentieller Mehrfach-Ionisation tritt nur bei Verwendung linear polarisierten Laserlichts auf. Bei Einsatz zirkular polarisierter Laserstrahlung konnte in den Experimenten keine signifikante Abweichung der Ionenausbeuten von den Vorhersagen der ADK-Theorie beobachtet werden. Es stellt sich die Frage, mit welchem physikalischen Bild dieser Ionisationsmechanismus erklärt werden kann.

### 2.5.3. Mechanismus der simultanen Mehrfach-Ionisation

Im Verlauf der letzten 10 Jahre ist eine Reihe von Modellen entwickelt worden, um die nicht-sequentielle Mehrfach-Ionisation in einem physikalischen Bild zu erklären. Bis zum heutigen Zeitpunkt ist es nicht gelungen, alle experimentellen Beobachtungen und die

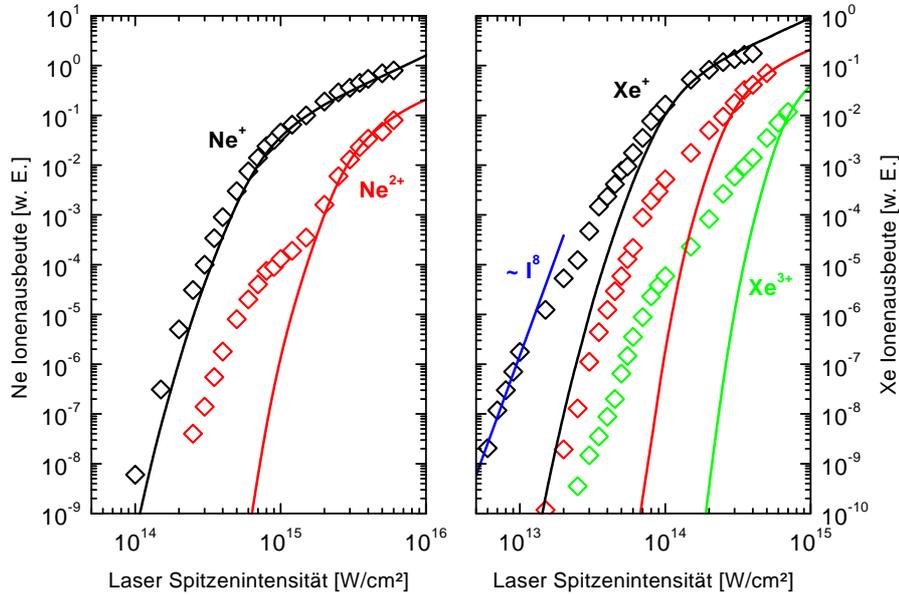


Abbildung 2.5.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Neon und Xenon nach Larochelle et al. [18] ( $\lambda = 800\text{nm}$ ,  $w_0 = 49\mu\text{m}$ ,  $\tau_{\text{HWHM}} = 100\text{fs}$ ). Im Vergleich dazu die nach dem sequentiellen Modell zur Mehrfach-Ionisation (ADK) erwarteten Ionenausbeuten (ausgezogene Linien). Die Abweichungen für  $\text{Xe}^+$  von der ADK-Kurve lassen sich in diesem niedrigen Intensitätsbereich ( $I \leq 2 \cdot 10^{13}\text{W/cm}^2$ ) mit der Dominanz der Mutliphoton-Ionisation gegenüber Tunnelionisation erklären: Zur Überwindung der  $\text{Xe}^+$ -Ionisationsschwelle ( $12.130\text{eV}$ ) werden mindestens 8  $800\text{nm}$ -Photonen benötigt.

daraus resultierenden theoretischen Ansätze in einem Szenario zu vereinen. Im Folgenden werden die wichtigsten Modelle kurz vorgestellt und nach ihren Vor- und Nachteilen bzgl. Theorie und Experiment beurteilt.

### Vollständige numerische Lösung der Schrödinger-Gleichung

Das umfassendste Verfahren zur Klärung des Ionisationsmechanismus, die numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung in einem äußeren elektromagnetischen Feld im 3-dimensionalen Raum, stößt bereits für den allereinfachsten Fall, das Helium-Atom, an die Grenzen der heutigen Computertechnik. In der Arbeitsgruppe von K. Taylor [24][25][26] werden unter Einsatz eines Cray-Großrechners derartige Rechnun-

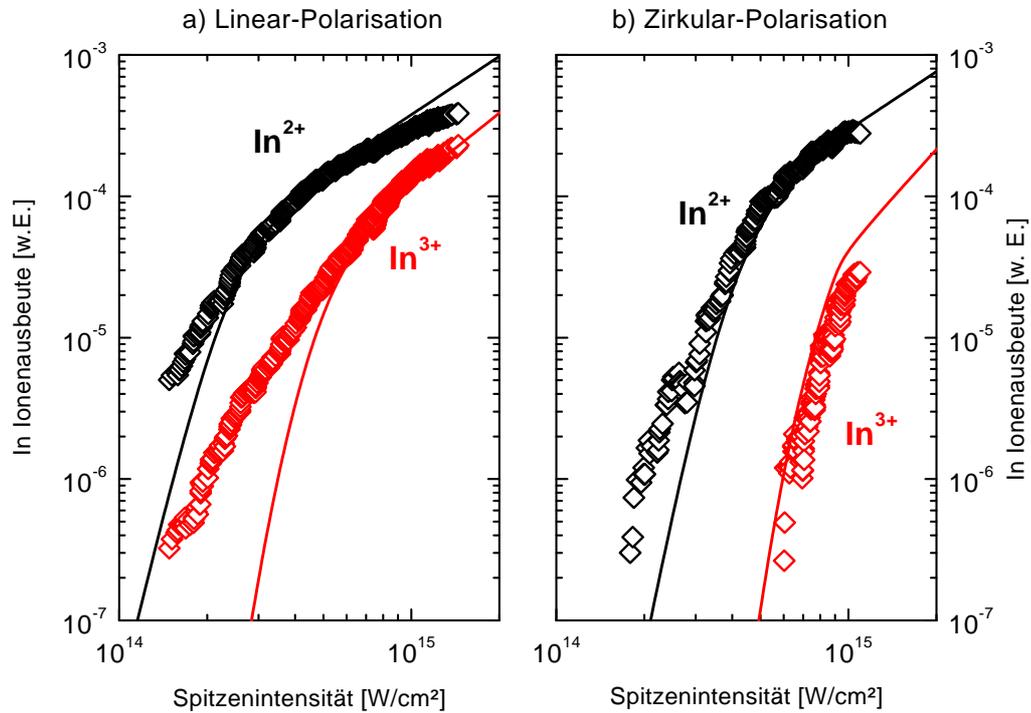


Abbildung 2.6.: Intensitätsabhängige Ausbeuten für Doppel- und Dreifach-Ionisation von Indium für lineare und zirkuläre Polarisation des Laserlichts. Im Vergleich dazu die nach dem sequentiellen Modell zur Mehrfach-Ionisation (ADK) erwarteten Ionenausbeuten (ausgezogene Linien).  
 Laser-Parameter:  $\lambda = 795\text{nm}$ ,  $w_0 = 10\mu\text{m}$ ,  $\tau_{\text{HWHM}} = 65\text{fs}$

gen angestrengt. Obwohl in diesen Rechnungen zur Doppelionisation von Helium auch ein Beitrag durch nicht-sequentielle Prozesse abzusehen ist, kann der zugrundeliegende physikalische Mechanismus zur simultanen  $\text{He}^{2+}$ -Ionisation aus den Simulationen heraus bislang nicht identifiziert werden. Gleiches gilt für die Ergebnisse anderer Arbeitsgruppen, die sich zur besseren theoretischen Handhabung des Problems auf die Berechnung in weniger als 3 Dimensionen beschränken oder die bei der abschnittswisen Modellierung der Dynamik des Gesamtprozesses die Anteile der Wechselwirkung der Elektronen einerseits im Coulombpotential untereinander und andererseits mit dem äußeren elektrischen Wechselfeld des Laserpulses in bestimmten Teilschritten selektiv stark vereinfachen oder gar vernachlässigen [27][28].

### S-Matrix-Theorie

Die von Becker und Faisal mit Hilfe der S-Matrix-Theorie reproduzierten Ionenausbeuten zeigen eine hervorragende Übereinstimmung mit den Helium-Messdaten der verschiedenen Arbeitsgruppen [29]. Für den Mechanismus der simultanen Doppelionisation ergibt sich dabei folgendes Bild: Ein erstes Elektron absorbiert aus dem Lichtfeld eine Anzahl Photonen bis über die Doppelionisations-Schwelle hinaus (virtueller *ATI*-artiger Prozess). Dieser Energieüberschuss wird per Korrelations-Wechselwirkung auf das zweite Elektron übertragen, so dass schließlich beide Elektronen gemeinsam in das Kontinuum freigesetzt werden.

Für komplexere Atome als Helium ist jedoch keine Berechnung *ab initio* mehr möglich. Für eine Erweiterung dieses Szenarios auf einen *e-ne*-Prozess sind eine Reihe von vereinfachenden Näherungen und die Verwendung experimentell bestimmter *e-ne*-Stoßquerschnitte erforderlich. Die so ausgeführten Rechnungen liefern aber ebenfalls gute Übereinstimmung für eine Reihe anderer Laserparameter und weitere Atomsorten [30][31][19].

Der S-Matrix-Formalismus lässt keine Aussage über die genaue zeitliche Reihenfolge der Photonenabsorption und des Energieaustauschs der Elektronen untereinander zu. Die vorliegenden Rechnungen verwenden stets linear polarisiertes Laserlicht, für zirkuläre Polarisation liegen bislang keine Ergebnisse vor.

### Kollektives Tunneln

Da die nicht-sequentielle Mehrfach-Ionisation vornehmlich im durch Tunnelionisation dominierten Intensitätsbereich auftritt, liegt die Vermutung nahe, dass sich diese als ein Mehrelektronen-Tunnelprozess in Konkurrenz zur sequentiellen Ionisation beschreiben lassen sollte. Ausgehend von der aus der ADK-Theorie bekannten Formel für die sequentielle Ionisationsrate  $w_{ADK}$  (2.12) konnte von U. Eichmann et al. am Max-Born-Institut Berlin ein Ausdruck für die simultane Ionisationsrate  $w_{CTI}$  eines Quasiteilchens mit Masse  $Nm_e$ , Ladung  $Ne$  und totaler Bindungsenergie  $E_{ion,tot}$  entwickelt werden [32]:

$$w_{CTI}(Nm_e, Ne, E_{ion,total}, F) \propto \exp \left\{ -4 \left( \sqrt{2m_e E_{ion,total}^3 / N} \right) / (3eF) \right\} \quad (2.25)$$

Dieses Resultat entspricht dem Ergebnis der Rechnungen von B. Zon [33], der darüber hinaus auch die korrekten Vorfaktoren ermitteln konnte. Der so beschriebene Mechanismus wird auch als kollektive Tunnelionisation (*CTI*) bezeichnet und unterscheidet sich von der sequentiellen Ein-Elektronen-Ionisationsrate der ADK-Theorie im Prinzip nur um einen Faktor  $N$  im Exponentialterm, wenn an die Stelle der Ein-Elektronen-Bindungsenergie ein effektives Ionisationspotential  $E_{ion,eff}$  für die simultane (kollektive) Tunnelionisation tritt.

$$w_{ADK}(m_e, e, E_{ion,0}, F) \propto \exp \left\{ -4 \left( \sqrt{2m_e E_{ion,0}^3} \right) / (3eF) \right\} \quad (2.26)$$

$$w_{CTI}(Nm_e, Ne, E_{ion,tot}, F) \propto \exp \left\{ -4N \left( \sqrt{2m_e E_{ion,eff}^3} \right) / (3eF) \right\} \quad (2.27)$$

$$\text{mit } E_{ion,eff} = \frac{E_{ion,total}}{N} = \frac{\sum_{i=1}^N E_{ion,i}}{N} . \quad (2.28)$$

Numerische Berechnungen für einen Zwei-Elektronen-Tunnelprozess bei Helium im statischen Feld zeigen, dass dieser möglich ist, wenn sich die beiden Elektronen im dynamischen Gleichgewicht im etwa gleichen Abstand vom Kern befinden. Bei zu unterschiedlichen Kern-Abständen wird eines der beiden Elektronen jedoch sofort wieder vom Kern eingefangen. Die so berechneten Tunnelraten sind jedoch zu klein, als dass sich die im Experiment beobachteten Ionenausbeuten damit erklären ließen. Der CTI-Mechanismus kann daher nicht als der dominierende Beitrag zur Erklärung der nicht-sequentiellen Mehrfach-Ionisation angesehen werden.

### Der *Shake*-Prozess

Wehlitz et al.[34] konnten unter Verwendung hochenergetischer Photonen ( $E_{Ph} \approx 100\text{eV}$ ) ein Verhältnis von  $\text{He}^{2+}/\text{He}^+ = 0,03 \dots 0,045$  für die Ionenausbeuten von Helium bestimmen. Dieser Befund lässt sich mit der Vorstellung erklären, dass ein erstes Elektron photoionisiert wird und sich aufgrund seines hohen kinetischen Energieüberschusses so schnell aus dem atomaren Orbit entfernt, dass das verbleibende Elektron nicht in der Lage ist, der adiabatischen Änderung des Coulombpotentials zum ionischen System Folge zu leisten und stattdessen ins Kontinuum geschüttelt wird (*shaken off*).

Fittinghoff et al.[35] haben dieses Szenario auf die Tunnelionisation in intensiven Lichtfeldern übertragen: Das erste Elektron wird feldionisiert und am Tunnelausgang infolge des starken äusseren Lichtfeldes vom Atom wegbeschleunigt. Das verbleibende Elektron kann sich wiederum nicht der instantanen Potentialänderung anpassen und wird abermals in das Kontinuum freigesetzt. Unter Verwendung des vorgenannten Verhältnisses und mit der Einführung eines freien Fit-Parameters als kritische Schwellenintensität für das Einsetzen des nichtsequentiellen Ionisationsprozesses konnten die Experimente in guter Übereinstimmung nachmodelliert werden.

$$\frac{\text{He}^{2+}}{\text{He}^+} \approx \text{const.} =: \alpha_{Shake} \ll 1 \quad \implies \quad N_{Shake}^{2+}(I) = \alpha_{Shake} N_{Shake}^+(I) \quad (2.29)$$

Obwohl das *Shake*-Modell ursprünglich für die Doppelionisation durch hochenergetische Photonen, deren Energie oberhalb der Doppelionisationsschwelle liegt, bei niedrigen Lichtintensitäten entwickelt worden ist, wird seine Anwendbarkeit durch die gute Reproduzierbarkeit der Messdaten gerechtfertigt. Andererseits ist der *Shake*-Prozess unabhängig von der Polarisation des Laserlichts, so dass die Unterdrückung simultaner Mehrfach-Ionisation bei Zirkular-Polarisation damit nicht erklärt werden kann.

### Das *Rescattering*-Modell

Nach einem Vorschlag von P. Corkum [36] lässt sich die simultane Mehrfach-Ionisation in einem semi-klassischen Bild als Elektronenstoß-Ionisation beschreiben. Ein erstes Elek-

tron wird tunnelionisiert, dies ist im Zeitbereich maximaler Feldamplitude am wahrscheinlichsten. Als nun freies Teilchen kann es im äußeren Lichtfeld weiter beschleunigt werden. Die Richtungsumkehr der oszillierenden Feldstärke zwingt es im Falle linearer Polarisierung, in den Einflußbereich des Atomkerns zurückzukehren. Bei dieser Rückstreuung des Elektrons am ionischen Rumpfatom im Nulldurchgang des elektrischen Feldes kann es durch e-2e-Stoß-, bzw. e-ne-Stoß-Ionisation einen Teil seiner kinetischen Energie auf eines oder mehrere der gebunden verbliebenen Elektronen übertragen und es werden mehrere Elektronen gleichzeitig in das Kontinuum freigesetzt.

Dieses Modell ist sehr erfolgreich auch zur Beschreibung anderer Phänomene in hochintensiven Laserfeldern angewendet worden, wie der Erzeugung Hoher Harmonischer [37], der Energieverteilung der erzeugten Photoelektronen und der Winkelverteilung hochenergetischer ATI-Elektronen [38]. Die Polarisationsabhängigkeit des nicht-sequentiellen Ionisationsprozesses ist im *Rescattering*-Modell sofort einsichtig, da für zunehmende Elliptizität der Überlapp des rückkehrenden Elektron-Wellenpaketes mit dem ionischen Rumpf immer unwahrscheinlicher wird. Einziger Widerspruch ist die Tatsache, dass der *Rescattering*-Mechanismus ein experimentell nicht beobachtetes Schwellenverhalten der simultanen Mehrfach-Ionisation impliziert: Nur wenn die von der Lichtintensität abhängige maximale kinetische Energie des rückkehrenden Elektrons größer als die Ionisationsschwelle des nächsthöheren Ladungszustandes ist, sollte ein weiteres Elektron durch Stoßionisation ausgelöst werden können. Für die Messungen an Helium ergibt sich dazu:

$$E_{ion}(He^{2+}) \leq E_{kin,max} = 3.17 U_{pond} \quad (2.30)$$

mit  $E_{ion}(He^{2+}) = 54.42 \text{ eV} \hat{\approx} 2 \text{ a.u.}$

$$\implies I_{Schwelle}(\lambda = 780 \text{ nm}) = 0.0086 \text{ a.u.} \hat{\approx} 3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$$

Ein Absinken der Ionisationsraten auf den rein sequentiellen Anteil unterhalb der Schwellenintensität konnte jedoch in den Messungen [17] nicht nachgewiesen werden (Abb. 2.4).

Neueste Messungen an Neon bestätigen dagegen die Gültigkeit des *Rescattering*-Modells. Durch orts- und zeitaufgelöste Messung der Impulsverteilung der erzeugten Ne<sup>2+</sup>- u. Ne<sup>3+</sup>-Ionen konnte der Zeitpunkt der Ladungstrennung relativ zur Phase des Lichtfeldes bestimmt werden [39]. Hiernach werden die Elektronen im Nulldurchgang des äußeren Wechselfeldes emittiert. Dies lässt sich nur mit dem im *Rescattering*-Modell beschriebenen zeitlichen Ablauf der Elektronenstoß-Ionisation vereinbaren. Alle anderen Modelle, die eine Ionisation im Zeitbereich maximaler Feldstärke favorisieren (*Shake*, *CTI*), stehen im Widerspruch zu diesem experimentellen Ergebnis.

### Empirische Formeln

- Eine weiterführende Auswertung der im Experiment beobachteten Ionenausbeuten der höheren Ladungszustände zeigt, dass die Messwerte der ersten Ionisationsstu-

fe und die Messdaten im nicht-sequentiellen Bereich des zweiten Ladungszustandes in einem annähernd konstanten Anzahlverhältnis zueinander stehen. Gleiches gilt wiederum für die zweite und dritte Ionisationsstufe oberhalb der Volumensättigung des ersten Ladungszustandes. Demnach bemisst sich die nicht-sequentielle Überhöhung der Ionenausbeute eines gegebenen Ladungszustandes auf einen Bruchteil der rein sequentiellen Ionenausbeute der vorherigen Ionisationsstufe. Dies veranlasste die Arbeitsgruppe von S.L. Chin zu dem pragmatischen Ansatz, dass die gemessenen Werte der  $k$ -ten Ionisationsstufe durch die gewichtete Summe der ADK-Raten der mindergeladenen Ionenausbeuten beschrieben werden können [40][18]:

$$N_k(I) = \sum_{i=1}^{k-1} \alpha_{ik} N_i^{ADK}(I) + N_k^{ADK}(I) \quad (2.31)$$

Die Vorfaktoren  $\alpha_{ik}$  dafür werden direkt aus den Messdaten empirisch ermittelt, womit sich in der Tat der intensitätsabhängige Verlauf der höhergeladenen Ionenausbeuten in recht guter Übereinstimmung mit den Messdaten nachbilden lässt. Dieser empirische Befund kann als ein weiteres Indiz für die Anwendbarkeit des von Fittinghoff et al. vorgeschlagenen *Shake*-Modells [35] zur Erklärung der simultanen Doppelionisation von Helium (vgl. S.17) angesehen werden. Beim *Shake-Off*-Prozess ergibt sich die Doppelionisationsrate ja ebenfalls als ein Bruchteil des Ein-Elektron-Ionisationsprozesses (vgl. Gl. 2.29). Ein eindeutiger Nachteil dieses Konzepts ist der Umstand, dass das *Shake*-Modell keine korrekte Grundlage zur Berechnung der Proportionalitätsfaktoren  $\alpha_{ik}$  liefert. Diese Größen müssen unmittelbar aus den Messdaten ermittelt werden.

- Im Rahmen der von U. Eichmann et al. durchgeführten Rechnungen zur kollektiven Tunnelionisation mehrerer Elektronen konnte ein empirischer Sachverhalt aufgezeigt werden, der ungeachtet des quantitativen Versagens der kollektiven Tunnelionisation auf eine empirische Formel zur einfachen Berechnung der Ionenausbeuten unter Berücksichtigung nicht-sequentieller Ionisationsprozesse führt. Abermals ausgehend von der aus der ADK-Theorie bekannten Formel für die sequentielle Ionisationsrate  $w_{ADK}$  (2.12) lässt sich die Rate  $w_N$  für eine simultane  $N$ -fach-Ionisation mit Hilfe der ADK-Theorie berechnen, wenn anstelle der Ein-Elektronen-Parameter abermals Effektiv-Werte eingesetzt werden, die sich aber von den bei der kollektiven Tunnelionisation hergeleiteten Größen leicht unterscheiden:

$$w_N(E_{ion,total}, n^*, F) = w_{ADK}(E_{ion,eff}, n_{eff}^*, F) \quad (2.32)$$

$$\propto \exp \left\{ -4 \left( \sqrt{2m_e(E_{ion,tot}/N)^3} \right) / (3eF) \right\} \quad (2.33)$$

mit

$$E_{ion,eff} = \frac{E_{ion,total}}{N} = \frac{\sum_{i=1}^N E_{ion,i}}{N} \quad (2.34)$$

$$n_{eff}^* = n^*(Z_{eff}, E_{ion,eff}) = \frac{Z_{eff}}{\sqrt{2E_{ion,eff}}} \quad (2.35)$$

$$Z_{eff} = N - 0.3 \quad . \quad (2.36)$$

Die auf diesem Ansatz basierenden Rechnungen liefern überraschenderweise eine recht gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten für eine Vielzahl von Atomen und Laserparametern [32]. Während die Wahl der beim Ionisationsprozess effektiv wirksamen Kernladung dem Abschirmfaktor zweier Elektroden zueinander entspricht [41], ist die Frage nach einer theoretischen Begründung für die offensichtliche Richtigkeit der Vernachlässigung des Faktors  $N$  im Exponentialterm im Vergleich zur kollektiven Tunnelionisation noch völlig offen. Die recht gute Übereinstimmung der numerischen Simulationen mit den experimentellen Daten bei gleichzeitig unkomplizierter Handhabung und geringem Aufwand an Ressourcen im Vergleich zu den zwei zuvor vorgestellten theoretischen Ansätzen rechtfertigt die weitere Verwendung dieses empirischen Sachverhalts. Daher wird die empirische Formel im Rahmen dieser Arbeit noch öfter zur Anwendung kommen, wenn es darum geht, den Einfluss nicht-sequentieller Prozesse auf die experimentell gewonnenen Ionenausbeuten abzuschätzen.

## 3. Modellrechnungen zur Ionisationsdynamik

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Untersuchungen zur Ionisationsdynamik bei hohen Lichtintensitäten beschränkten sich nicht auf die experimentelle Arbeit allein. Vielmehr war es für ein besseres Verständnis der auftretenden Effekte allgemein als auch für die unmittelbare Beurteilung der eigenen experimentellen Resultate unerlässlich, die Möglichkeit der Modellierung dieses Mehrteilchen-Ionisationsprozesses in Form einer computerbasierten Simulation zur Verfügung zu haben. Zu Beginn der Arbeiten existierte in der Arbeitsgruppe ein von Dr. H. Maeda in Fortran geschriebenes Kalkulationsprogramm. Damit war die numerische Simulation des Ionisationsprozesses für ein Ensemble neutraler Atome bis in den 6. ionischen Endzustand möglich. Der Algorithmus basierte auf dem ADK-Modell und konnte unter Verwendung der empirischen Formel (vgl. S.19) Ionenausbeuten sowohl für einen rein sequentiellen als auch für einen kombinierten sequentiell-simultanen Mehrteilchen-Prozess numerisch berechnen. Teil der vorliegenden Arbeit war die Portierung nach C und sodann die kontinuierliche Weiterentwicklung des Codes für die im Laufe der Zeit neu hinzugekommenen theoretischen und experimentellen Denkansätze und Erkenntnisse.

### 3.1. Das Simulationsprogramm

Der Algorithmus des Simulationsprogramms liefert relative Teilchenzahlen für die Ionenausbeuten der verschiedenen resultierenden Ladungszustände bezogen auf den Ionisationsprozess eines einzigen Teilchens. Für die Teilchenanzahl  $k$ -fach geladener Ionen im räumlich unbegrenzten Wechselwirkungsvolumen nach vollständigem Abklingen des Laserpulses gilt [42]:

$$N_k(I(t)) = \rho \int_0^{\infty} P_k(V(I(t))) dV = \rho \int_{I_{max}}^0 P_k(I(t)) \frac{dV}{dI} dI \quad . \quad (3.1)$$

Hierbei bezeichnen  $\rho$  die Dichte der Target-Atome und  $P_k$  die Wahrscheinlichkeit der Erzeugung des  $k$ -ten Ladungszustandes während der Wechselwirkungsdauer des Lichtpulses. Der funktionale Zusammenhang zwischen Intensität und Größe des Wechselwirkungsvolumens, innerhalb dessen diese Intensität erreicht und überschritten wird, ergibt

### 3. Modellrechnungen zur Ionisationsdynamik

---

Element	Wellenlänge [nm]	Fokusradius [ $\mu\text{m}$ ]	HWHM-Pulsdauer [fs]	Quelle
Helium	780	8	80	[17]
Neon	800	49	100	[18]
Argon	800	49	100	[18]
Krypton	800	49	100	[40]
Xenon	800	49	100	[40],[18]
Indium	795	10	65	[23]
Krypton	795	10	65	[19]
Xenon	795	10	30	diese Arbeit
Neon	795	10	30	diese Arbeit
Lithium	795	10	30	diese Arbeit

Tabelle 3.1.: Die in den Modellrechnungen für die verschiedenen Elemente verwendeten Laserparameter zwecks Vergleichbarkeit mit den experimentellen Daten.

sich aus dem räumlichen Intensitätsprofil des Laserfokus nach Gl. 2.21. Die Berechnung der (relativen) Teilchenanzahl der möglichen ionischen Endprodukte erfordert also ein Verfahren in zwei Schritten. Zuerst werden die Besetzungswahrscheinlichkeiten der einzelnen Ladungszustände für eine Anzahl verschiedener Spitzenintensitäten zeitabhängig berechnet. An dieser Stelle fließt die Laserlicht-Pulsform als zeitliche Intensitätsverteilung in die Rechnung ein. Charakterisiert durch die HWHM-Pulsdauer können Laserpulse mit Gaußscher oder Lorentz-förmiger Zeitstruktur simuliert werden. Die mit dem Lichtpuls wechselwirkenden Atome und Ionen sind dafür als ein Mehr-Niveau-System aufzufassen, in dem das äußere Lichtfeld ionisierende Übergänge verursacht. Abbildung 3.1 zeigt dies beispielhaft für ein Teilchen-Ensemble, das maximal 3-fach ionisiert werden kann. Das zeitabhängige Verhalten der Besetzungszahlen der einzelnen Niveaus während der Dauer des Laserpulses kann in einem System von Ratengleichungen beschrieben werden:

$$\frac{dN_0}{dt} = -(R_{01} + R_{02} + R_{03} + \dots + R_{0f}) N_0 \quad (3.2)$$

$$\frac{dN_1}{dt} = R_{01}N_0 - (R_{12} + R_{13} + R_{14} + \dots + R_{1f}) N_1 \quad (3.3)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = R_{02}N_0 + R_{12}N_1 - (R_{23} + R_{24} + R_{25} + \dots + R_{2f}) N_2 \quad (3.4)$$

$$\dots \quad \dots \quad (3.5)$$

$$\frac{dN_f}{dt} = R_{0f}N_0 + R_{1f}N_1 + R_{2f}N_2 + \dots + R_{(f-1)f}N_{(f-1)} \quad (3.6)$$

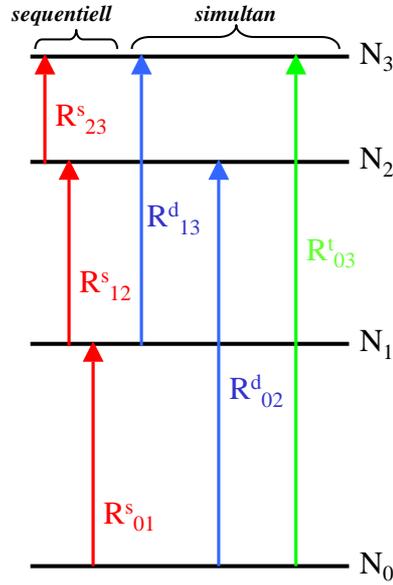


Abbildung 3.1.: Schematische Darstellung des in den Modellrechnungen implementierten Ratengleichungs-Systems, in dem sequentielle und nicht-sequentielle Ionisationsraten miteinander konkurrieren.

mit

$$R_{k(k+1)} = R_{k(k+1)}(I(t), E_{ion}(k)) \equiv w_{ADK}(I(t), E_{ion}(k)) \quad (3.7)$$

und

$$R_{k(k+m)} = R_{k(k+m)}(I(t), E_{ion,total}(k, \dots, k+m)) \quad (3.8)$$

$$= \begin{cases} w_{ADK}(I(t), E_{ion,eff}(k, \dots, k+m)) & , \text{ simultane m-fach-Ionisation} \\ & \text{berücksichtigt} \\ 0 & , \text{ simultane m-fach-Ionisation} \\ & \text{vernachlässigt} \end{cases}$$

Die numerische Lösung dieses Systems gekoppelter Differentialgleichungen wird durch ein Runge-Kutta-Verfahren 5. Ordnung mit impliziter adaptiver Schrittweiten-Korrektur [43] realisiert.

Die wiederholte zeitabhängige Bestimmung der Ionenausbeuten für unterschiedliche Spitzenintensitäten simuliert eine Variation der Ortskoordinaten bzgl. des Laserfokus-Zentrums und ermöglicht so die Integration der Besetzungswahrscheinlichkeiten über die räumlich inhomogene Intensitätsverteilung des Laserlichts (vgl. Abb. 3.2). Für jede gewählte Spitzenintensität erhält man einen Satz von (relativen) Teilchenzahlen der

### 3. Modellrechnungen zur Ionisationsdynamik

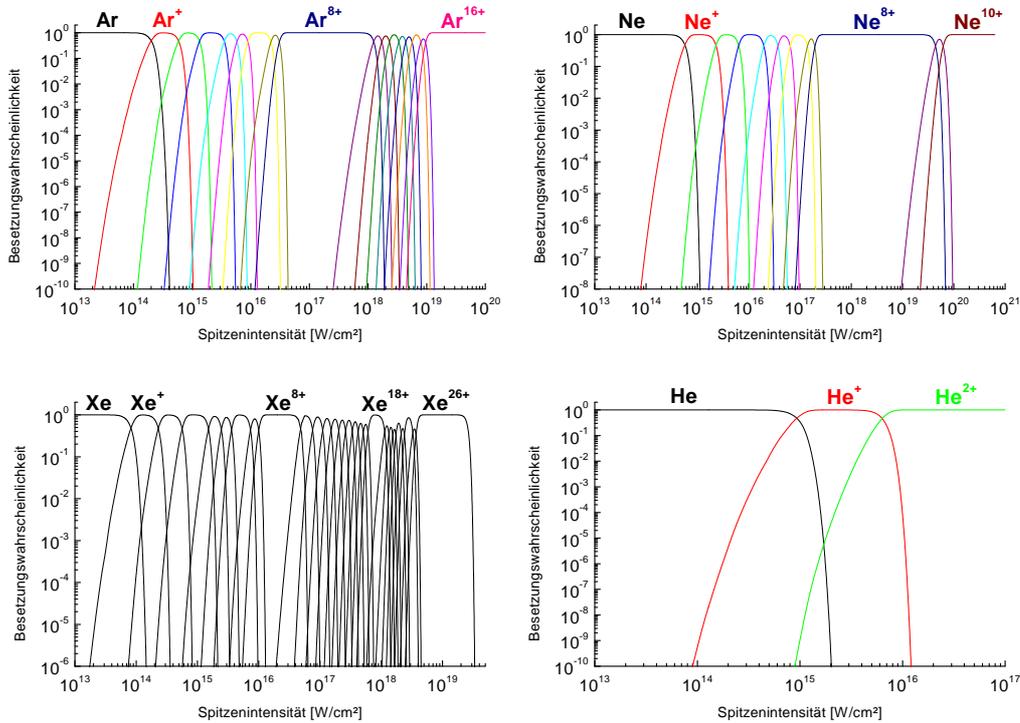


Abbildung 3.2.: Simulations-Algorithmus - 1.Schritt: Berechnung der Besetzungswahrscheinlichkeiten der einzelnen ionischen Endzustände nach vollständigem Abklingen des Lichtpulses in Abhängigkeit von der Intensität im Pulsmaximum. Die in der Simulation verwendeten Laserparameter sind Tabelle 3.1 zu entnehmen.

betrachteten Ladungszustände, die nun mit dem Wert der Ableitung der Volumenfunktion bei der entsprechenden Intensität gewichtet aufsummiert werden (vgl. Abb. 3.3). Auf diese Weise wird die abschließende numerische Integration nach Gl.3.1 der einzelnen ionischen Endprodukte über die während des Laserpulses im Wechselwirkungsvolumen auftretenden Lichtintensitäten durchgeführt. Die Summation erfolgt nach der Simpsonschen Regel [43], um bereits für eine angemessen geringe Anzahl von Intensitätswerten (Teilintervalle der Integration) eine zufriedenstellende Konvergenz der resultierenden Ionenausbeuten zu erreichen. Um die Simpson-Integration, welche auf linear äquidistanten Teilintervallen beruht, besser an das exponentielle Verhalten des Integranden anzupassen, wird der Integrationsbereich in eine Summe von Simpson-Integrationen unterteilt. Während innerhalb einer Integrationsstufe die lineare Schrittweite konstant bleibt, nimmt die Größe der Schrittweiten von Stufe zu Stufe exponentiell zu. Im Rah-

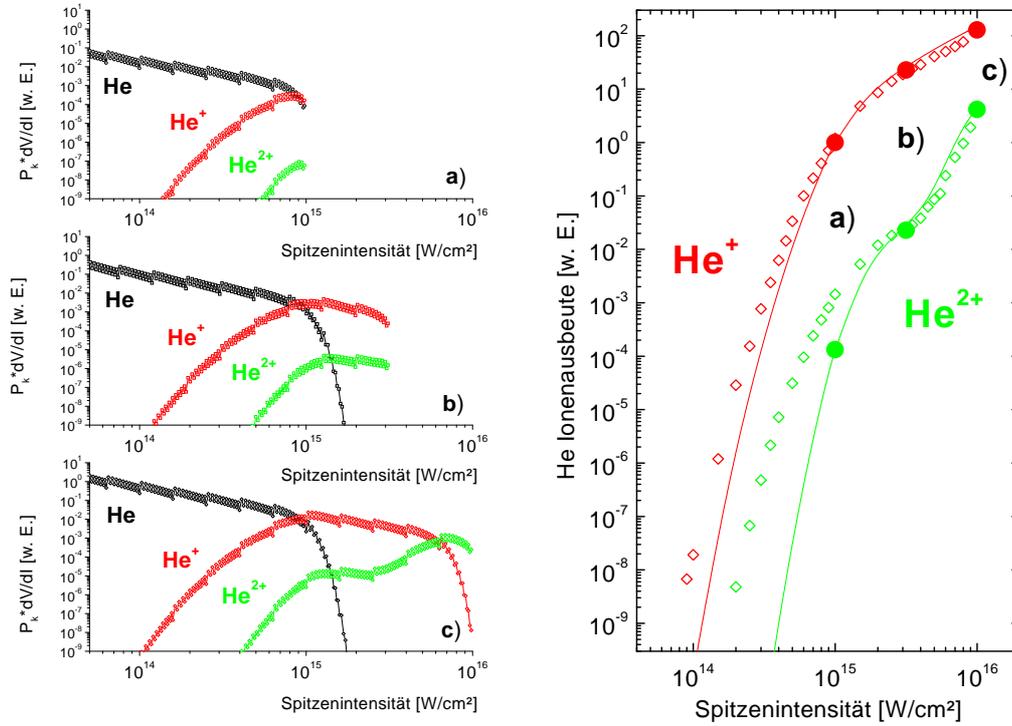


Abbildung 3.3.: Simulations-Algorithmus - 2.Schritt: Numerische Integration der zuvor berechneten Besetzungswahrscheinlichkeiten über das Fokusvolumen entsprechend ihrem Anteil an der Gesamt-Teilchenanzahl mit dem zugehörigen Volumenfaktor gewichtet. Exemplarische Darstellung an Helium für drei verschiedene Lichtintensitäten. Die in der Simulation verwendeten Laserparameter sind Tabelle 3.1 zu entnehmen.

men der Volumenfunktion, bzw. ihrer Ableitung fließen die räumlichen Parameter des Laserfokus (Strahltaile  $w_0$ , Laserpuls-Zentralwellenlänge  $\lambda$ ) in die Rechnung ein.

Wie bereits erwähnt, liefert das Simulationsprogramm nur relative, auf ein Einheitsvolumen bezogene Teilchenanzahlen. Lediglich das Anzahlverhältnis der einzelnen Ladungszustände zueinander wird exakt berechnet. Die Modellrechnungen besitzen also noch einen einzigen verbleibenden globalen Skalierungs-Parameter, mit dem die theoretischen Daten an die in den experimentellen Resultaten erfassten absoluten Teilchenzahlen, bzw. an die im realen Wechselwirkungsfokus herrschende Teilchendichte angepasst werden können. Dies erfolgt in der Regel derart, dass die berechneten Ionenausbeuten alle mit ein und demselben Faktor multipliziert werden, so dass die Ionenausbeuten des niedrigsten Ladungszustandes von Experiment und Simulation im Intensitätsbereich

oberhalb der Sättigung aufeinander zu liegen kommen.

$$\begin{aligned}
 \text{Experiment:} \quad N_k^{Exp}(I, \rho_{Exp}) &\mapsto \text{Referenz-Datenwert} \quad N_1^{Exp}(I_{Ref}, \rho_{Exp}) \\
 \text{Simulation:} \quad N_k^{Sim}(I, \rho_{Sim}) &\mapsto \alpha N_k^{Sim}(I, \rho_{Sim}) \quad \text{für alle } k = 1 \dots m \\
 &\text{mit} \quad \alpha = \frac{N_1^{Exp}(I_{Ref}, \rho_{Exp})}{N_1^{Sim}(I_{Ref}, \rho_{Sim})} \quad (3.9)
 \end{aligned}$$

### 3.2. Sequentielle Mehrfach-Ionisation

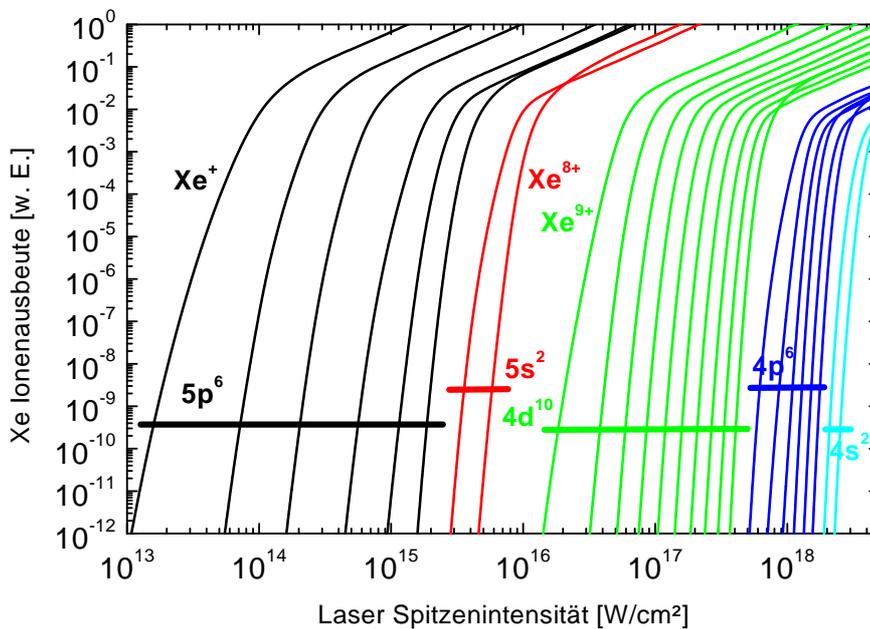


Abbildung 3.4.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Xenon<sup>+</sup> bis Xenon<sup>26+</sup> nach dem rein sequentiellen ADK-Modell.

Die erste Anforderung an ein fortgeschriebenes, erweitertes und in vielerlei Hinsicht verbessertes Simulationsprogramm ist weiterhin die korrekte Berechnung der Ionenausbeuten auf Basis eines rein sequentiellen Ionisationsmechanismus. Abbildung 3.4 zeigt den Leistungsumfang des aktuellen Programms anhand der Ionenausbeuten der ersten 26 Ladungszustände des Elements Xenon, wie sie nach der ADK-Theorie erwartet werden. Die daraus ablesbaren Sättigungsintensitäten der einzelnen ionischen Endzustände (Abknicken des Signals in die Volumensättigung  $\propto I^{3/2}$ ) stimmen gut mit den aus dem Sattelpunktverhalten der Tunnelionisation abgeleiteten Werten überein (vgl. Abb. 3.10).

Auf den ersten Blick widersprüchlich erscheinen jedoch die Überkreuzungen einzelner Kurven. So berechnet für  $\text{Xe}^{7+}$  u.  $\text{Xe}^{8+}$  bei  $I \approx 2.1 \cdot 10^{16} \text{W/cm}^2$  oder  $\text{Xe}^{16+}$ ,  $\text{Xe}^{17+}$  u.  $\text{Xe}^{18+}$  bei  $I \approx 8.7 \cdot 10^{17} \text{W/cm}^2$ , bzw.  $I \approx 1.0 \cdot 10^{18} \text{W/cm}^2$ . Auffällig ist, dass dieses Phänomen immer nur am Schalenabschluss, also vor einem signifikanten Anstieg des Ionisationspotentials für den nachfolgenden Ladungszustand wegen des Wechsels zur nächsten l-Unterschale auftritt; dies gibt zugleich den entscheidenden Hinweis zur Erklärung dieses korrekt berechneten Verhaltens der Ionenausbeuten.

Solange die Spitzenintensität im Laserfokus nicht ausreicht, um den nächsthöheren Ladungszustand zu erzeugen, werden alle Atome im Fokuszentrum in den maximal erreichbaren Ionisationszustand gebracht. Bis die Spitzenintensität die Schwelle zur Produktion der nächsten Ionisationsstufe erreicht hat, wächst also der Volumenanteil des höchsten Ladungszustandes stärker als die sich bereits in Volumensättigung befindenden niedrigeren Ladungszustände. Immer dann, wenn die Differenz der Ionisationsenergien benachbarter ionischer Endzustände sehr viel kleiner als die Ionisationsschwelle des darauffolgenden Ladungszustandes ist, kann es also vorkommen, dass im Fokuszentrum mehr höhergeladene Ionen erzeugt werden als in der benachbarten Volumenschale an niedergeladenen Ionen. Erst nach Überschreiten der Schwellenintensität für die nächste Ionisationsstufe wird dieses überproportionale Wachstum gestoppt, auch der bislang höchste Ladungszustand erreicht die Volumensättigung und bei weiterer Zunahme der Spitzenintensität bleibt das Verhältnis der Ionenausbeuten zu den niederen Ladungszuständen konstant.

Dieses Verhalten ist bereits in den Modellrechnungen von Augst et al.[12] für  $\text{Xe}^{8+}$  dokumentiert und lässt sich in einer einfachen analytischen Abschätzung quantitativ nachvollziehen. Bei Näherung der Besetzungswahrscheinlichkeiten  $P_k(I)$  durch Rechteckfunktionen in den Grenzen der Schwellenintensitäten, innerhalb derer die Wahrscheinlichkeit der Produktion des k-ten Ladungszustandes mehr als 50 Prozent beträgt, lässt sich die Volumenintegration direkt ausführen, und es ergibt sich als Kreuzungsbedingung der Ionenausbeuten benachbarter Ladungszustände:

$$\begin{aligned}
 P_k(I) &\approx \begin{cases} 1 & , \quad I_{\text{Schwelle}}(k) \leq I \leq I_{\text{Schwelle}}(k+1) \\ 0 & , \quad \text{sonst} \end{cases} \\
 \text{wobei} \quad I_{\text{Schwelle}}(k) &= I(P_{k-1} = P_k = 0.5) \\
 \text{und} \quad I_{\text{Schwelle}}(k+1) &= I(P_k = P_{k+1} = 0.5) \\
 \Rightarrow N_k = \rho \int_{I_{\text{max}}}^0 P_k(I) \frac{dV}{dI} dI &= \rho [V(I_{\text{Schwelle}}(k)) - V(I_{\text{Schwelle}}(k+1))] \quad .
 \end{aligned}$$

Und damit

$$\begin{aligned}
 N_k &= N_{k+1} \\
 &\iff \\
 V(I_{\text{Schwelle}}(k)) - V(I_{\text{Schwelle}}(k+1)) &= V(I_{\text{Schwelle}}(k+1)) - V(I_{\text{max}}) \quad (3.10)
 \end{aligned}$$

### 3. Modellrechnungen zur Ionisationsdynamik

---

Daraus folgt für den vorliegenden Fall (vgl. Abbildung 3.5):

Ladungs- zustand	$I_{\text{Schwelle}}$ [W/cm <sup>2</sup> ]	$I_{\text{Kreuzung}}^{\text{analytisch}}$ [W/cm <sup>2</sup> ]	$I_{\text{Kreuzung}}^{\text{Simulation}}$ [W/cm <sup>2</sup> ]
Xe <sup>7+</sup>	7.4 10 <sup>15</sup>		
Xe <sup>8+</sup>	1.0 10 <sup>16</sup>	2.4 10 <sup>16</sup>	2.1 10 <sup>16</sup>
Xe <sup>17+</sup>	5.1 10 <sup>17</sup>		
Xe <sup>18+</sup>	6.1 10 <sup>17</sup>	1.1 10 <sup>18</sup>	8.7 10 <sup>17</sup>
Xe <sup>16+</sup>	4.2 10 <sup>17</sup>		
Xe <sup>18+</sup>	6.1 10 <sup>17</sup>	1.7 10 <sup>18</sup>	1.0 10 <sup>18</sup>

Womit das Ergebnis der Modellrechnungen durch eine simple analytische Abschätzung bestätigt werden kann.

Da dieses Phänomen, wenn überhaupt, erst im Anfangs-Bereich der Volumensättigung auftritt, wird seine Existenz durch simultane Ionisationsmechanismen nicht beeinflusst. Nicht zuletzt deshalb wird diesem Sachverhalt im Rahmen der atomaren Ionisationsdynamik keine größere Beachtung geschenkt und Ergebnisse einer genaueren experimentellen Untersuchung des Effekts sind in der einschlägigen Literatur nicht publiziert worden.

Der Nachweis der Fähigkeiten des vorliegenden Simulationsprogramms zur korrekten Berechnung von Ionenausbeuten auf Grundlage der ADK-Theorie ist damit erbracht. Dies wird zusätzlich durch die gute Übereinstimmung der ADK-Modell-Rechnungen mit einer Vielzahl experimenteller Daten für die Ionenausbeuten der ersten Ionisationsstufe sowie das Sättigungsverhalten höherer Ladungszustände bestätigt, wie sie im Rahmen dieser Arbeit in Abbildungen an anderer Stelle zu begutachten ist.

Bevor Modellrechnungen zur Beschreibung simultaner Ionisationsmechanismen vorgestellt werden, soll noch auf einen interessanten Nebenaspekt in Zusammenhang mit der vielfach als Referenz-Modell angesehenen ADK-Theorie eingegangen werden.

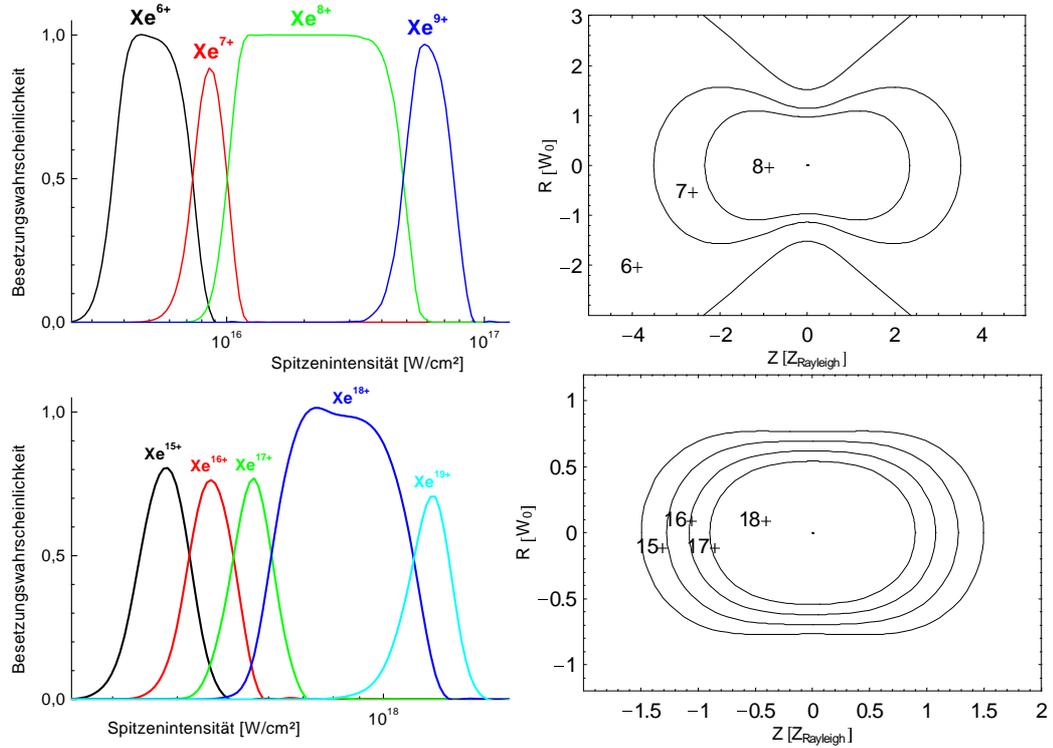


Abbildung 3.5.: Große Differenzen in den Ionisationsenergien benachbarter Ladungszustände können Überkreuzungen in den berechneten Ionenausbeuten verursachen (näheres siehe Text). Im Falle von Xenon tritt dies für Xe<sup>7+</sup> u. Xe<sup>8+</sup>, bzw. Xe<sup>16+</sup>, Xe<sup>17+</sup> u. Xe<sup>18+</sup> auf. Dargestellt sind die Besetzungswahrscheinlichkeiten  $P_k(I)$  der betroffenen Ionisationsstufen (linke Hälfte) und die daraus resultierenden Proportionen ihrer zugeordneten Volumenschalen (rechte Hälfte). Es ergibt sich:

$$\begin{aligned}
 I_{max} &\geq 2.1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2 : V(Xe^{8+}) > V(Xe^{7+}) \quad \text{bzw.} \\
 I_{max} &\geq 1.0 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2 : V(Xe^{18+}) > V(Xe^{16+}) > V(Xe^{17+}) \quad .
 \end{aligned}$$

### 3.3. Direkte Approximation der Tunnelbarriere (Trapez-Form)

Die bereits in Gl. 2.12 vorgestellte, von Ammosov, Delone & Krainov entwickelte Formel für die sequentielle Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_{ADK}$ , besteht bei genauerer Betrachtung aus mehreren Faktoren, die für die Beschreibung der verschiedenen an der Ionisation beteiligten physikalischen Prozesse stehen.

$$\begin{aligned}
 W_{ADK} &= \omega_A C_{n^*, l, m}^2 E_{ion} \left( \frac{2(2E_{ion})^{3/2}}{F(t)} \right)^{2n^* - |m| - 1} \times \\
 &\quad \left( \frac{3F(t)}{\pi (2E_{ion})^{3/2}} \right)^{1/2} \times \exp \left[ -2 \frac{(2E_{ion})^{3/2}}{3F(t)} \right] \\
 &= W_{atomar}(E_{ion}, n^*, l, m, F(t)) \times \\
 &\quad W_{<F>t}(E_{ion}, F(t)) \times W_{Tunnel}(E_{ion}, F(t))
 \end{aligned}$$

Durch den ersten Faktor wird der elektronische Ausgangszustand des zu ionisierenden Elektrons beschrieben, der zweite Faktor ergibt sich aus einer zeitlichen Mittelung der äußeren Feldstärke über eine Periode der Laserschwingung und der Exponentialfaktor beschreibt die Tunnelwahrscheinlichkeit des Elektrons durch die durch das Lichtfeld auf endliches Maß reduzierte Potentialbarriere. Dabei stellt gerade der Tunnelfaktor nur eine sehr grobe Näherung der realen Verhältnisse dar. Für die Transmissionswahrscheinlichkeit  $W_{Tunnel}$  eines Elektrons mit Energie  $E$  durch eine Potentialbarriere mit beliebiger Form  $V(x)$  gilt allgemein (in atomaren Einheiten)[5]:

$$W_{Tunnel} = \exp \left[ -2 \left| \int_{x_1}^{x_2} \sqrt{2(V(x) - E)} dx \right| \right] . \quad (3.11)$$

Im allereinfachsten Fall eines statischen äußeren elektrischen Feldes der Stärke  $F_0$  ergibt sich damit für ein mit  $E_{ion} < 0$  gebundenes Elektron

$$W_{Tunnel}^{ADK} = \exp \left[ -2 \left| \int_0^{E_{ion}/F_0} \sqrt{2(E_{ion} - F_0 x)} dx \right| \right] = \exp \left[ -2 \frac{\sqrt{2}(E_{ion})^{3/2}}{3F_0} \right] \quad (3.12)$$

Das ADK-Modell vernachlässigt also den Einfluss des Coulomb-Potentials auf die Form der Tunnelbarriere. Diese grobe Näherung wird durch den Beitrag der anderen Faktoren entsprechend kompensiert, weshalb die ADK-Theorie trotzdem eine angemessene Beschreibung des Ionisationsprozesses ermöglicht. Es stellt sich aber die Frage, welche Qualität ein unter Berücksichtigung des Coulomb-Potentials entwickelter Ausdruck für die Ionisationswahrscheinlichkeit besitzt.

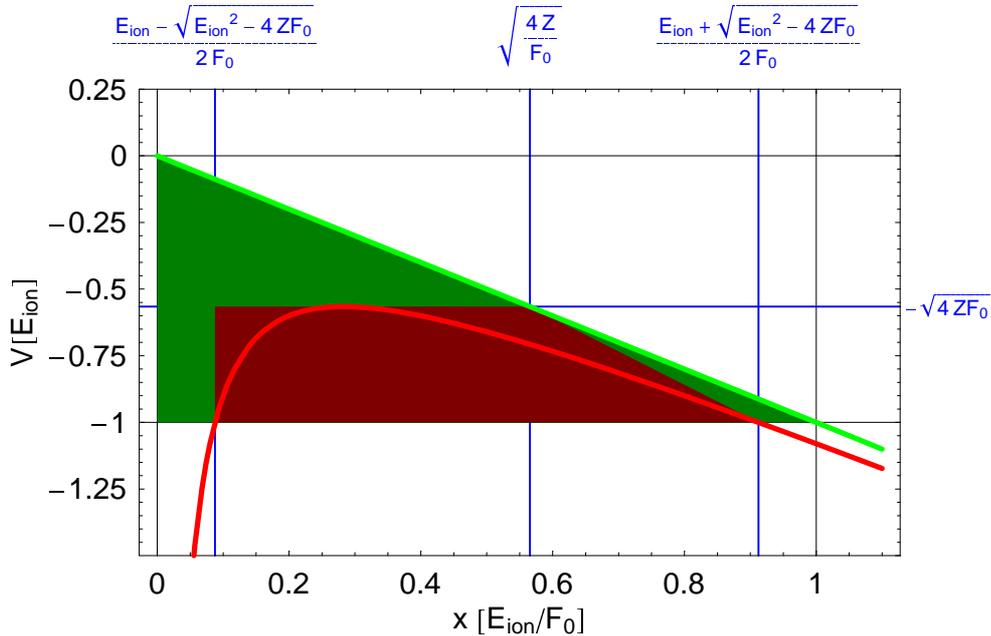


Abbildung 3.6.: Vergleich der Potentialbarrieren, wie sie in den Modellrechnungen zur sequentiellen Tunnelionisation berücksichtigt werden. Bei Vernachlässigung des Coulomb-Potentials ergibt sich eine simple Dreiecks-Form:  $V(0 < x < E_{ion}/F_0) = -F_0 x$  (ADK-Theorie). Eine bessere Approximation liefert dagegen ein trapezförmiger Verlauf (siehe Text Gl. 3.15), bei dem die realen Dimensionen der effektiven Potentialbarriere eingesetzt werden (vgl. Abb. 2.2). Darstellungs-Parameter:  $Z = 2$ ,  $E_{ion}/F_0 = 5.0$

Wie im vorigen Kapitel bereits ausgeführt, bewirkt der Einfluss des elektrischen Wechselfeldes auf das Coulomb-Potential einerseits eine Reduzierung der räumlichen Ausdehnung der Tunnelbarriere, andererseits eine Absenkung der Barrierenhöhe (vgl. Gl.2.7-2.10 auf S.7). Damit berechnet sich die Tunnelwahrscheinlichkeit zu

$$W_{Tunnel} = \exp \left[ -2 \int_{\frac{E_{ion} - \sqrt{E_{ion}^2 - 4ZF_0}}{2F_0}}^{\frac{E_{ion} + \sqrt{E_{ion}^2 - 4ZF_0}}{2F_0}} \sqrt{2 \left( E_{ion} - \frac{Z}{|x|} - F_0 x \right)} dx \right] \quad (3.13)$$

Die analytische Lösung dieses Integrals beinhaltet elliptische Integral-Funktionen und ist damit zu komplex, um sie in eine Modellrechnung in erster Näherung zu implementieren.

### 3. Modellrechnungen zur Ionisationsdynamik

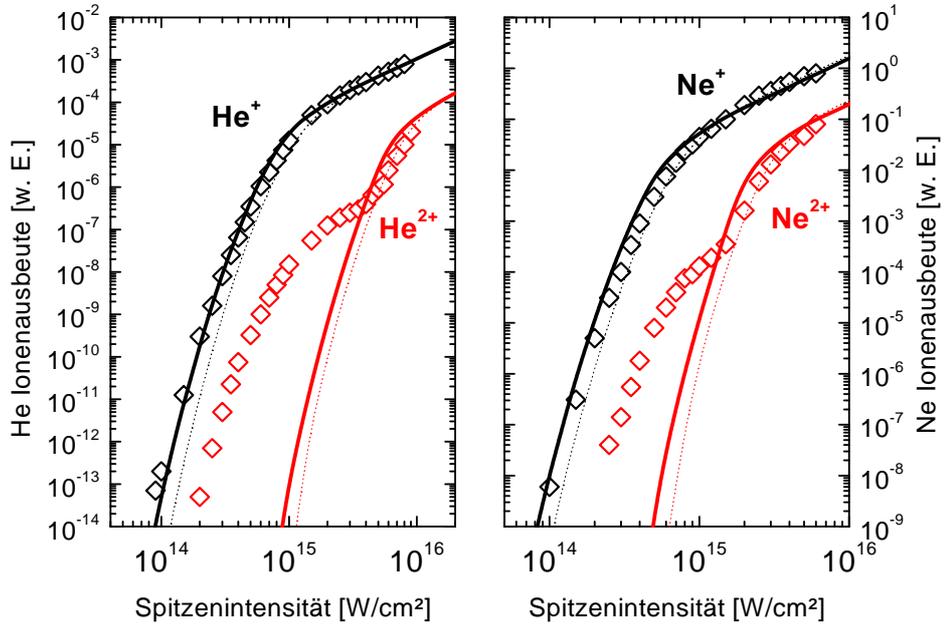


Abbildung 3.7.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Helium, bzw. Neon bei Näherung der Tunnelbarriere durch einen trapezförmigen Potentialverlauf (durchgezogene Linien) sowie nach ADK-Theorie (gepunktete Linien) im Vergleich zu den Messdaten. Zur Anpassung an die gemessenen Ionenausbeuten wurden die theoretischen Kurvenpaare jeweils mit einem einheitlichen Faktor multipliziert. Helium[17]:  $\alpha_{\text{Trapez}} = 1.30$ ,  $\alpha_{\text{ADK}} = 2.25$ ; Neon[18]:  $\alpha_{\text{Trapez}} = 0.75$ ,  $\alpha_{\text{ADK}} = 1.50$ .

Für eine signifikant verbesserte Abschätzung der Tunnelrate reicht es bereits aus, dass die Form der Tunnelbarriere durch eine einfache geometrische Approximation des effektiven Potentialverlaufs nachgebildet wird. Wie in Abbildung 3.6 dargestellt, lässt sich die Potentialbarriere durch ein Trapez recht gut nachbilden.

$$W_{\text{Tunnel}}^{\text{Trapez}} = \exp \left[ -2 \int_{\frac{E_{\text{ion}} - \sqrt{E_{\text{ion}}^2 - 4ZF_0}}{2F_0}}^{\sqrt{\frac{4Z}{F_0}}} \sqrt{2(E_{\text{ion}} - \sqrt{4ZF_0})} dx + \right.$$

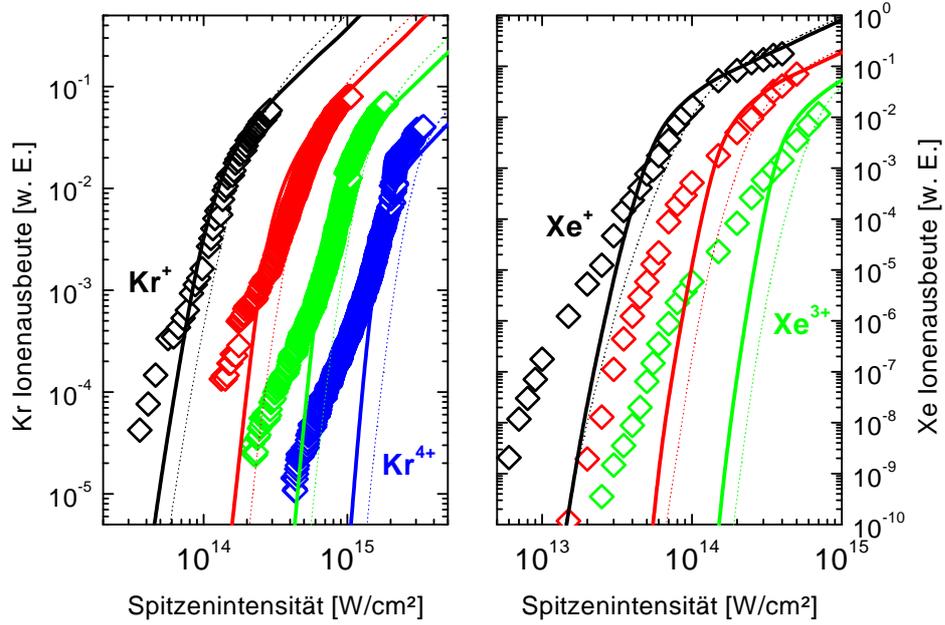


Abbildung 3.8.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Krypton, bzw. Xenon bei Näherung der Tunnelbarriere durch einen trapezförmigen Potentialverlauf (durchgezogene Linien) sowie nach ADK-Theorie (gepunktete Linien) im Vergleich zu den Messdaten. Zur Anpassung an die gemessenen Ionenausbeuten wurden die theoretischen Kurvenpaare jeweils mit einem einheitlichen Faktor multipliziert. Krypton[19]:  $\alpha_{Trapez} = 350$ ,  $\alpha_{ADK} = 1000$ ; Xenon[40]:  $\alpha_{Trapez} = 0.60$ ,  $\alpha_{ADK} = 1.50$ .

$$\frac{1}{2} \left[ \frac{E_{ion} + \sqrt{E_{ion}^2 - 4ZF_0}}{2F_0} \int_{\sqrt{\frac{4Z}{F_0}}}^{\sqrt{2(E_{ion} - \sqrt{4ZF_0})}} \sqrt{2(E_{ion} - \sqrt{4ZF_0})} dx \right] \quad (3.14)$$

$$W_{Tunnel}^{Trapez} = \exp \left[ -2 \left\{ \sqrt{\frac{4Z}{F_0}} - \left( \frac{E_{ion} - \sqrt{E_{ion}^2 - 4ZF_0}}{2F_0} \right) \right\} \sqrt{2(E_{ion} - \sqrt{4ZF_0})} + \frac{1}{2} \left\{ \left( \frac{E_{ion} + \sqrt{E_{ion}^2 - 4ZF_0}}{2F_0} \right) - \sqrt{\frac{4Z}{F_0}} \right\} \sqrt{2(E_{ion} - \sqrt{4ZF_0})} \right] \quad (3.15)$$

Bei Absenkung der Potentialbarriere unter die Bindungsenergie würde die Trapez-Nähe-

### 3. Modellrechnungen zur Ionisationsdynamik

---

rung imaginäre Werte annehmen; dies wird durch eine explizite Abfrage im Rechenalgorithmus verhindert.

$$W_{Tunnel}^{Trapez} = \begin{cases} 1 & \text{falls } E_{ion}^2 < 4ZF(t) \\ W_{Tunnel}^{Trapez}(E_{ion}, Z, F(t)) & \text{nach Gl. 3.15 sonst} \end{cases} \quad (3.16)$$

Die Abbildungen 3.7 u. 3.8 zeigen die jeweils mit dem ADK-Modell und der Trapez-Tunnelformel erhaltenen Ionenausbeuten im Vergleich zu den experimentellen Resultaten für eine Reihe von Elementen. Dabei ist zu beachten, dass die Trapez-Tunnelwahrscheinlichkeit allein aus dem Exponentialterm nach Gl.3.15 besteht und außer Bindungsenergie  $E_{ion}$  und Kernladungszahl  $Z$  des resultierenden Ladungszustandes keine weiteren atomaren Parameter enthält. Insofern ergibt sich eine erstaunlich gute Übereinstimmung der Messdaten mit den theoretischen Kurven nach der rein exponentiellen Trapez-Tunnelwahrscheinlichkeit.

Die Ionenausbeuten der Trapez-Approximation liegen unterhalb der Volumensättigung des jeweiligen Ladungszustandes, in der Regel eine Größenordnung über denen der ADK-Formel. Für  $\text{He}^+$  und  $\text{Ne}^+$  ergibt sich dadurch gerade im Intensitätsbereich  $I < 510^{15} \text{ W/cm}^2$  eine hervorragende Reproduktion der gemessenen Werte. **Ursache für die Abweichungen der ADK-Theorie in diesem Bereich ist demnach ihre grobe Überschätzung der Potentialbarriere für die Tunnelionisation und nicht etwa eine Zunahme der Ionisationsraten infolge von Multiphoton-Prozessen, die ja in beiden Modellrechnungen keine Berücksichtigung finden.** Dementsprechend ist die deutliche Abweichung des gemessenen  $\text{Xe}^+$ -Signals von den Ergebnissen beider Rechnungen für  $I < 3 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  eindeutig mit Multiphoton-Ionisation als dominierendem Mechanismus in diesem Intensitätsbereich zu erklären (vgl. Abb. 2.5).

Im Bereich der Volumensättigung liefern beide Modelle praktisch gleiche Ergebnisse; die ADK-Ausbeuten liegen in der Regel leicht oberhalb der Trapez-Tunnel-Kurven. Bei Krypton ist dies am deutlichsten ausgeprägt. Das Verhältnis der Ionenausbeuten der einzelnen Ladungszustände untereinander wird hier ebenfalls mit der rein exponentiellen Trapez-Approximation recht gut nachmodelliert.

Bleibt abschließend festzustellen, dass die theoretische Beschreibung der rein sequentiellen atomaren Ionisationsdynamik, wie sie das ADK-Modell liefert, durch eine rein exponentielle Formel, die auf einer simplen geometrischen Näherung des die Tunnelionisation bestimmenden effektiven Potentials durch eine Trapezform beruht, praktisch ebensogut nachmodelliert werden kann. Was die ADK-Theorie demgegenüber auszeichnet, ist jedoch ihre wohlbegründete Herleitung aus der quantenmechanischen Beschreibung der die Ionisationsdynamik prägenden physikalischen Phänomene.

Deshalb wird im Rahmen dieser Arbeit weiterhin das ADK-Modell als Referenz-Theorie und damit als Basis für die Beschreibung der atomaren Ionisationsprozesse bei höchsten Lichtintensitäten verwendet werden. Wie die Einbeziehung der nicht-sequentiellen Ionisationsmechanismen in ein auf die ADK-Theorie gegründetes Modell möglich wird, ist Gegenstand der nun folgenden Abschnitte.

### 3.4. Eine empirische Formel für simultane Mehrfach-Ionisation

Die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Modellrechnungen zur nicht-sequentiellen Mehrfach-Ionisation basieren allesamt auf einer empirischen Formel, die von Dr. U. Eichmann in der Arbeitsgruppe entwickelt worden ist. Wie schon im vorherigen Kapitel ausgeführt, ist sie ein Nebenprodukt des Versuchs, den physikalischen Mechanismus der simultanen Mehrfach-Ionisation als einen kollektiven Tunnelprozess zweier oder mehrerer Elektronen zu beschreiben (vgl. S.16 u. S.19). In den auf alternativen Lösungsansätzen basierenden Simulationen anderer Arbeitsgruppen konnte zwar die Existenz kollektiver Tunnelionisation als eine Möglichkeit zur simultanen Freisetzung mehrerer Elektronen nachgewiesen werden, quantitative Vergleichsrechnungen zeigen allerdings, dass dieser Ionisationsmechanismus nicht den entscheidenden, dominanten Beitrag liefern kann, um die im Experiment beobachteten Ionenausbeuten erklären zu können. Dies ändert jedoch nichts an der Tatsache, dass unter Verwendung des mit der Formel umschriebenen empirischen Sachverhalts eine gegenüber der ADK-Theorie signifikant verbesserte Abschätzung für die gemessenen intensitätsabhängigen Ionenausbeuten der höheren Ladungszustände von komplexen Atomen erzielt werden kann.

Zur Erinnerung: Nach der empirischen Formel berechnet sich die Wahrscheinlichkeit für die simultane  $M$ -fach-Ionisation des  $K$ -ten Ladungszustandes im äußeren anregenden Laser-Lichtfeld der Stärke  $F(t)$  zu

$$W_{K(K+M)}(F(t), n^*, l, m, E_{ion,total}) = W_{ADK}(F(t), n_{eff}^*, l, m, E_{ion,eff}) \quad . \quad (3.17)$$

Mit

$$E_{ion,eff} = \frac{E_{ion,total}}{M} = \frac{\sum_{i=K}^{K+M} E_{ion,i}}{M} \quad (3.18)$$

$$n_{eff}^* = n^*(Z_{eff}, E_{ion,eff}) = \frac{Z_{eff}}{\sqrt{2E_{ion,eff}}} \quad (3.19)$$

$$Z_{eff} = (K + M) - 0.3 \quad (3.20)$$

Die Berechnung der zeitabhängigen Besetzungswahrscheinlichkeiten der in der Simulation berücksichtigten Ionisationsstufen während der Dauer des Laser-Lichtpulses erfolgt sodann in einem System gekoppelter Ratengleichungen (vgl. Gl. 3.2-3.6), in denen die sequentiellen und nicht-sequentiellen Prozesse miteinander konkurrieren. Die simultanen Prozesse stellen also ein Reihe von zusätzlichen Anregungskanälen in höhere Ladungszustände zur Verfügung. Ihr Anteil an der Produktionsrate eines bestimmten ionischen Endzustandes ist außer von der augenblicklichen Lichtintensität nur vom Verhältnis der effektiven Bindungsenergien, bzw. Kernladungszahlen von sequentiellen und nicht-sequentiellen Prozessen zueinander abhängig.

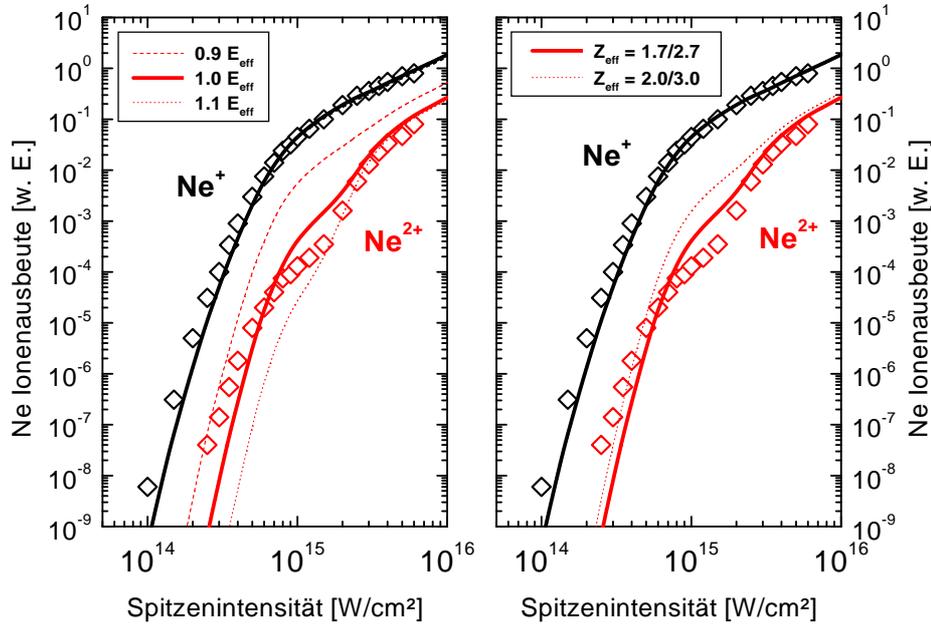


Abbildung 3.9.: Einfluss der korrekten Wahl von effektiver Bindungsenergie und Kernladungszahl für die simultane Doppelionisations-Rate bei Neon auf die Qualität der Modellrechnungen mit der empirischen Formel. Bereits geringfügige Variationen ( $\pm 10\%$ ) führen zu deutlichen Abweichungen von den experimentellen Resultaten [18].

Welchen entscheidenden Einfluss die richtige Wahl des effektiven Ionisationspotentials sowie der effektiven Kernladungszahl auf die Güte der Übereinstimmung der berechneten Ionenausbeuten mit den gemessenen Werten hat, zeigt die Abbildung 3.9 : Schon eine Abweichung um 10% vom arithmetischen Mittel der Einteilchen-Bindungsenergien liefert eine um mindestens eine Größenordnung schlechtere theoretische Vorhersage für die Ne<sup>2+</sup>-Ausbeute. Vergleichbare Auswirkungen hat auch eine falsche Wahl der effektiven Kernladungszahlen für die nicht-sequentuellen Ionisationswahrscheinlichkeiten. Trotz Verwendung der korrekten effektiven Bindungsenergien ergibt sich mit  $W_{0M}(Z_{eff} = M)$  anstatt  $W_{0M}(Z_{eff} = M - 0.3)$  für  $M = 2, 3$  eine so große Überschätzung der simultanen Ne-Doppelionisationsrate, dass sich im Bereich des sog. Ne<sup>2+</sup>-Knies die Abweichung gegenüber den experimentellen Daten auf über eine Größenordnung verdoppelt.

Die Ergebnisse der Modellrechnungen mit der empirischen Formel für verschiedene Elemente zeigen die Abbildungen 3.11 - 3.14 am Ende dieses Kapitels (S. 41f : Die jeweils mit B gekennzeichneten Darstellungen).

Es zeigt sich, dass die aus der Verwendung der empirischen Formel zur Berechnung der nicht-sequentiellen Überhöhung resultierenden theoretischen Kurven bereits eine deutlich verbesserte Annäherung an die im Experiment beobachteten Ionenausbeuten ermöglichen als die rein sequentielle ADK-Theorie. So beträgt die Diskrepanz zwischen den Messwerten von Neon, Krypton u. Xenon und ihren Modellrechnungen generell nicht mehr als eine Größenordnung. Bemerkenswerterweise ergibt sich gerade bei Helium die schlechteste Anpassung: Für Intensitäten  $I < 1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  unterschätzt die Kalkulation die wahre  $\text{He}^{2+}$ -Ionenausbeute um bis zu 5 Größenordnungen, was aber immer noch deutlich besser ist als die Vorhersagen des ADK-Modells (ca. 9-10 Größenordnungen bei  $I \approx 4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ).

Bei näherer Betrachtung der theoretischen Kurven fällt auf, dass diese dem intensitätsabhängigen Verlauf der Messkurven nicht wirklich folgen. Die mit der empirischen Formel berechneten Ionenausbeuten besitzen vielmehr ein Steigungsverhalten, das eine Überkreuzung der kalkulierten Werte mit den experimentellen Daten bei einer bestimmten Intensität bewirkt. Dies ist am deutlichsten bei  $\text{Ne}^{2+}$  und  $\text{Xe}^{3+}$  ausgeprägt. Bei  $\text{He}^{2+}$  liegt dieser Kreuzungspunkt direkt im Ansatzbereich des sog. Knies. Unterhalb des Schnittpunktes werden die gemessenen Ionenausbeuten von der Modellrechnung unterschätzt. Für Intensitäten oberhalb der Überkreuzung werden zu hohe Ausbeuten vorhergesagt. Erst im Bereich der Volumensättigung ergibt sich dann ein Einschwenken auf direkt mit dem Experiment übereinstimmende Werte, die dann aber auch mit der ADK-Theorie korrekt berechnet werden können.

Obwohl diese Abweichungen der theoretischen Kurven vom gemessenen Verlauf in der Regel weniger als eine Größenordnung betragen, was bereits eine wesentliche Verbesserung gegenüber der ADK-Theorie ist, stellt sich die Frage, ob vielleicht ein modifizierter Einsatz der empirischen Formel eine noch bessere Modellierung des tatsächlichen intensitätsabhängigen Verhaltens der Ionenausbeuten ermöglichen kann.

### 3.5. *Shake-artige Rechnungen mit der empirischen Formel*

Eine weiterführende Auswertung der im Experiment beobachteten Ionenausbeuten der höheren Ladungszustände zeigt, dass die Messwerte der ersten Ionisationsstufe und die Messdaten im nicht-sequentiellen Bereich des zweiten Ladungszustandes in einem annähernd konstanten Anzahlverhältnis zueinander stehen. Gleiches gilt wiederum für die zweite und dritte Ionisationsstufe oberhalb der Volumensättigung des ersten Ladungszustandes. Demnach bemisst sich die nicht-sequentielle Überhöhung der Ionenausbeute eines gegebenen Ladungszustandes auf einen Bruchteil der rein sequentiellen Ionenausbeute der vorherigen Ionisationsstufe. Dies veranlasste die Arbeitsgruppe von S.L. Chin zu dem bereits vorgestellten empirischen Ansatz (vgl. S. 18), dass die gemessenen Werte der  $k$ -ten Ionisationsstufe durch die gewichtete Summe der ADK-Raten der

### 3. Modellrechnungen zur Ionisationsdynamik

---

minder geladenen Ionenausbeuten beschrieben werden können [40][18]:

$$N_k(I) = \sum_{i=1}^{k-1} \alpha_{ik} N_i^{ADK}(I) + N_k^{ADK}(I) \quad (3.21)$$

Die Vorfaktoren  $\alpha_{ik}$  dafür werden direkt aus den Messdaten empirisch ermittelt. Auf diese Weise lässt sich in der Tat der intensitätsabhängige Verlauf der höher geladenen Ionenausbeuten in recht guter Übereinstimmung mit den Messdaten nachbilden. Die Offenlegung dieses empirischen Sachverhalts kann als experimenteller Befund für die Gültigkeit des von Fittinghoff et al. eingeführten *Shake*-Modells [35] zur Erklärung der simultanen Mehrfachionisation interpretiert werden (vgl. S.17). Ein eindeutiger Nachteil dieses Konzepts ist der Umstand, dass das *Shake*-Modell keine korrekte Grundlage zur Berechnung der Proportionalitätsfaktoren  $\alpha_{ik}$  liefert. Diese Größen müssen weiterhin unmittelbar aus den Messdaten ermittelt werden.

An diesem Punkt stellt sich die Frage, ob nicht vielleicht die empirische Formel diese Lücke in der theoretischen Beschreibung der nicht-sequentiellen Ionisationsprozesse durch das *Shake*-Modell füllen kann. Zur Bestimmung der Proportionalitätsfaktoren  $\alpha_{ik}$  wird sodann das Verhältnis der Ionisationswahrscheinlichkeiten von sequentiell und simultanem Prozess bei einer bestimmten Referenz-Intensität einmalig ermittelt. Die nicht-sequentielle Ionisationswahrscheinlichkeit für eine bestimmte Intensität des zeitabhängigen äußeren Lichtfeldes ergibt sich dann proportional zur augenblicklichen sequentiellen Ionisationswahrscheinlichkeit, die nach der ADK-Formel berechnet wird.

$$W_{K(K+M)}(I(t)) = \alpha_{KM} W_{K(K+1)}^{ADK}(I(t)) \quad (3.22)$$

$$\begin{aligned} \text{mit} \quad \alpha_{KM} &= \frac{W_{K(K+M)}(I_{Ref}(K), E_{ion,total}(K, \dots, K+M))}{W_{K(K+1)}^{ADK}(I_{Ref}(K), E_{ion}(K))} \\ &= \frac{W^{ADK}(I_{Ref}(K), E_{ion,eff}(K, \dots, K+M))}{W^{ADK}(I_{Ref}(K), E_{ion}(K))} \end{aligned} \quad (3.23)$$

$$\text{und} \quad I_{Referenz}(K) = \gamma I_{Sätt}(K) \propto \gamma \left( \frac{E_{ion}^2(K)}{4Z} \right)^2 \quad (3.24)$$

Als Referenz-Intensität kann eigentlich nur ein Vielfaches der Sättigungsintensität der jeweils vorherigen Ionisationsstufe in Frage kommen, da dies ein einheitliches charakteristisches Maß für das Tunnelionisations-Verhalten aller zu betrachtenden Ladungszustände darstellt. Abbildung 3.10 zeigt das Ansteigen der Sättigungsintensität in Abhängigkeit vom Ladungszustand für eine Reihe ausgewählter Atomsorten.

Die Ergebnisse der Rechnungen nach dem *Shake*-Modell mit der empirischen Formel für verschiedene Elemente zeigen die Abbildungen 3.11 - 3.14 am Ende dieses Kapitels (S. 41f : Die jeweils mit A gekennzeichneten Darstellungen).

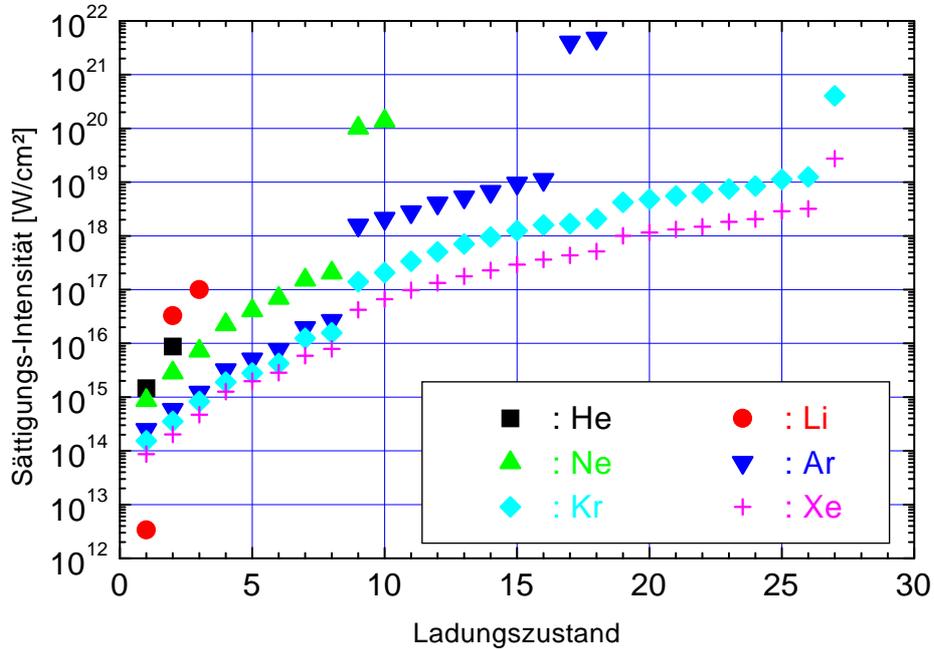


Abbildung 3.10.: Sättigungsintensitäten ausgewählter Elemente in Abhängigkeit vom ionischen Endzustand. Diese berechnen sich aus  $F_{Sätt} = E_{ion}^2 / (4Z)$  (elektrische Feldionisation).

Die direkte Gegenüberstellung der beiden Arten von Modellrechnungen mit der empirischen Formel zeigt im Vergleich mit den experimentellen Resultaten eine hervorragende Übereinstimmung für die auf dem *Shake*-Modell basierenden theoretischen Kurven. Der nach dem *Shake*-Modell modifizierte Einsatz der empirischen Formel ist als eine weitere deutliche Qualitätsverbesserung bei der korrekten Vorausberechnung der nicht-sequentiellen Anteile von den mit höchstintensiven Laserpulsen erzeugten Ionenausbeuten zu werten. Dabei stellt sich die Wahl von  $I_{Referenz} = 1.0 I_{Sättigung}$  als ein für verschiedene Atomsorten gleichermaßen angemessener Wert heraus. Lediglich bei Neon führt dies zu keinem zufriedenstellenden Ergebnis. Bei Verwendung von  $I_{Ref}^{Neon} = 0.7 I_{Sätt}$  ergibt sich aber ebenfalls eine ausgezeichnete Modellierung der Messdaten. Ursache dafür ist wohl der besondere Umstand, dass nur bei Neon die empirische Formel gerade im Bereich der Sättigungsintensität eine zu hohe  $Ne^{2+}$ -Ausbeute liefert. In allen anderen Fällen liegen die bei der Sättigungsintensität berechneten Ionenausbeuten direkt auf oder leicht unterhalb der gemessenen Ausbeuten. Ein physikalische Begründung für diesen Sonderfall Neon gibt es nicht. Allerdings ist es bislang auch nicht gelungen, das

### 3. Modellrechnungen zur Ionisationsdynamik

---

Element	Ionisationschwelle [eV]							
	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII
Helium	24.588	54.418						
Lithium	5.392	75.641	122.455					
Neon	21.565	40.963	63.46	97.12	126.22	157.93	207.3	239.09
Argon	15.760	27.630	40.74	59.81	75.02	91.01	124.32	143.46
Krypton	14.000	24.360	36.95	52.5	64.7	78.5	111.0	125.94
Indium	5.786	18.870	28.044	54				
Xenon	12.130	21.21	32.1	46.7	59.7	71.8	92.1	105.9

Tabelle 3.2.: Einteilchen-Ionisationspotentiale ausgewählter Elemente, wie sie in den Modellrechnungen verwendet wurden. Die Daten wurden dem Buch von R. Cowan [44] entnommen.

Ionisationsverhalten von Neon durch Modellrechnungen auf Basis der S-Matrix-Theorie zufriedenstellend nachzubilden [45].

Abschließend bleibt festzustellen, dass unter Verwendung der empirischen Formel in einer auf dem *Shake-Off*-Mechanismus basierenden Rechnung die von verschiedenen Arbeitsgruppen an einer Reihe von Atomsorten gemessenen Abweichungen der Ionenausbeuten von den Vorhersagen der rein sequentiellen ADK-Theorie am besten nachmodelliert werden können. Das durch diese Ergebnisse unter Beweis gestellte Leistungsvermögen des im Rahmen dieser Arbeit soweit fortentwickelten Simulationsprogrammes gibt berechtigten Anlass zu der Annahme, dass auch die Ergebnisse zukünftiger Experimente mit ihm korrekt vorausberechnet werden können. Und dass dann eine mögliche Abweichung der Simulationen von den empirischen Daten Hinweise auf eine Änderung der bei der Mehrteilchen-Ionisation in höchstintensiven Laserpulsen wirksamen physikalischen Mechanismen liefern kann. Die in den beiden folgenden Kapiteln vorgestellten experimentellen Resultate werden dafür ein erster Prüfstein sein.

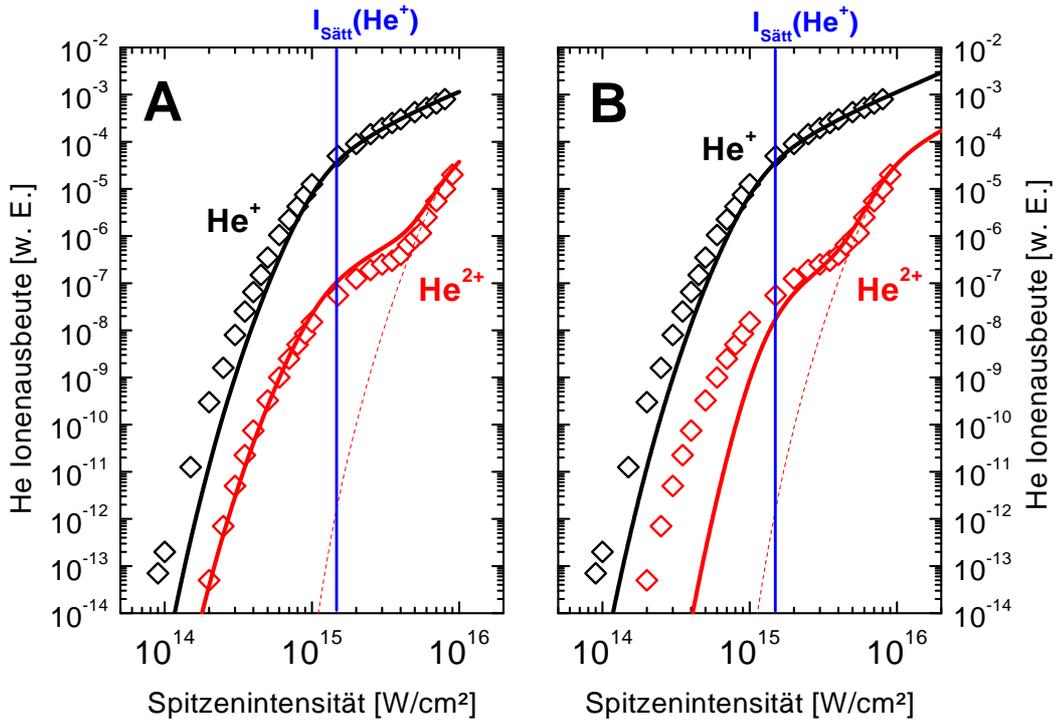


Abbildung 3.11.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Helium aus Modellrechnungen mit der empirischen Formel. A: Beschreibung der nicht-sequentiellen Mehrfach-Ionisation als *Shake*-Mechanismus mit  $I_{\text{Ref}} = 1.0 I_{\text{Sätt}}$  (näheres siehe Text). B: Berechnung der simultanen Mehrfach-Ionisation in direkter Konkurrenz zum sequentiellen Prozess. Jeweils zum Vergleich auch die nach der rein sequentiellen ADK-Theorie erwarteten Ionenausbeuten (gepunktete Linien). Zur Anpassung an die gemessenen Ionenausbeuten[17] wurden die theoretischen Kurven mit dem Faktor  $\alpha = 2.25$  multipliziert (vgl. Gl. 3.9).

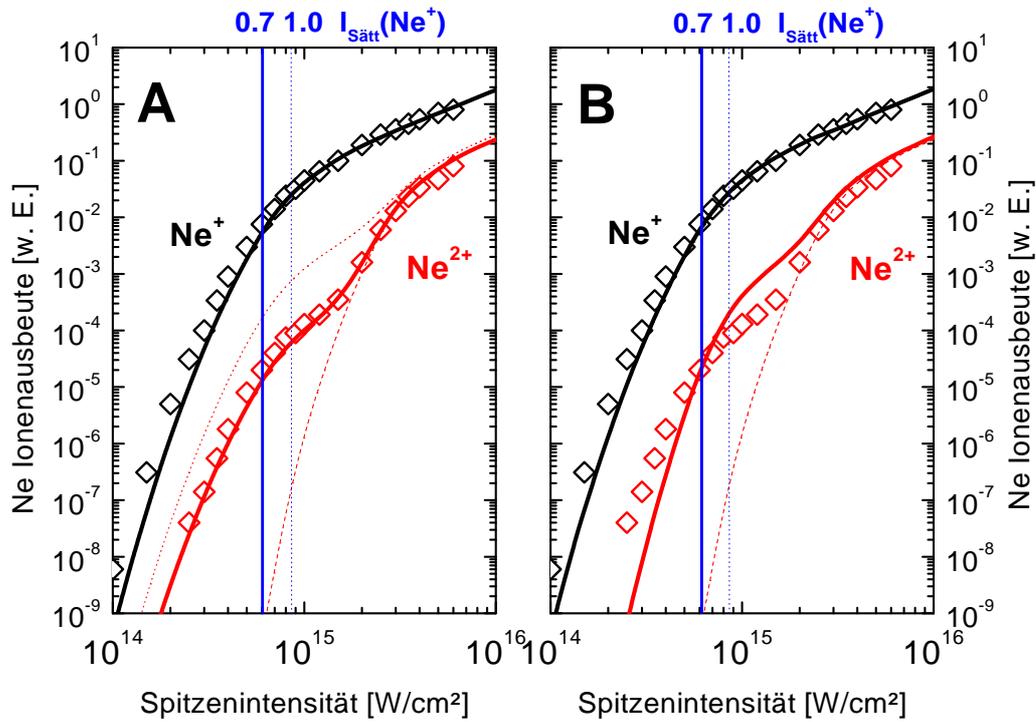


Abbildung 3.12.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Neon aus Modellrechnungen mit der empirischen Formel. A: Beschreibung der nicht-sequentiellen Mehrfach-Ionisation als *Shake*-Mechanismus mit  $I_{Ref} = 0.7 I_{Sätt}$  (näheres siehe Text); für  $I_{Ref} = 1.0 I_{Sätt}$  wird die  $Ne^{2+}$ -Ausbeute eindeutig überschätzt (gestrichelte Linie). B: Berechnung der simultanen Mehrfach-Ionisation in direkter Konkurrenz zum sequentiellen Prozess. Jeweils zum Vergleich auch die nach der rein sequentiellen ADK-Theorie erwarteten Ionenausbeuten (gepunktete Linien). Zur Anpassung an die gemessenen Ionenausbeuten[18] wurden die theoretischen Kurven mit dem Faktor  $\alpha = 1.50$  multipliziert (vgl. Gl. 3.9).

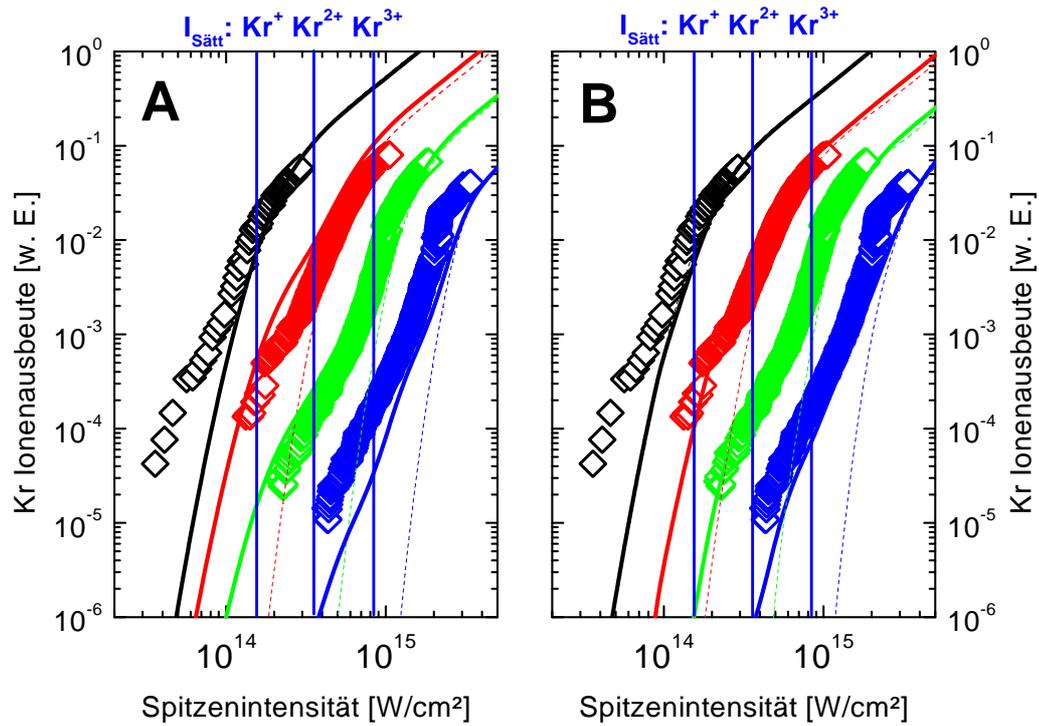


Abbildung 3.13.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Krypton aus Modellrechnungen mit der empirischen Formel. A: Beschreibung der nicht-sequentiellen Mehrfach-Ionisation als *Shake*-Mechanismus mit  $I_{\text{Ref}} = 1.0 I_{\text{sätt}}$  (näheres siehe Text). B: Berechnung der simultanen Mehrfach-Ionisation in direkter Konkurrenz zum sequentiellen Prozess. Jeweils zum Vergleich auch die nach der rein sequentiellen ADK-Theorie erwarteten Ionenausbeuten (gepunktete Linien). Zur Anpassung an die gemessenen Ionenausbeuten[19] wurden die theoretischen Kurven mit dem Faktor  $\alpha = 1000$  multipliziert (vgl. Gl. 3.9).

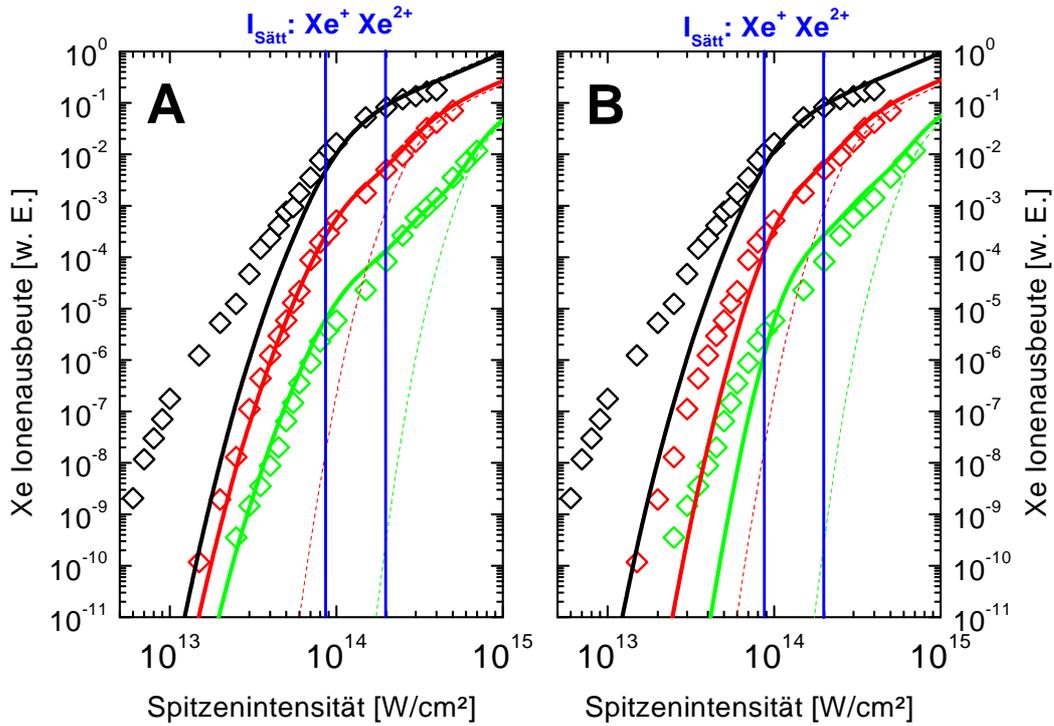


Abbildung 3.14.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Xenon aus Modellrechnungen mit der empirischen Formel. A: Beschreibung der nicht-sequentiellen Mehrfach-Ionisation als *Shake*-Mechanismus mit  $I_{Ref} = 1.0 I_{Sätt}$  (näheres siehe Text). B: Berechnung der simultanen Mehrfach-Ionisation in direkter Konkurrenz zum sequentiellen Prozess. Jeweils zum Vergleich auch die nach der rein sequentiellen ADK-Theorie erwarteten Ionenausbeuten (gepunktete Linien). Zur Anpassung an die gemessenen Ionenausbeuten[40] wurden die theoretischen Kurven mit dem Faktor  $\alpha = 1.50$  multipliziert (vgl. Gl. 3.9).

## 4. Experimente bei hohen Intensitäten

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente erstreckten sich über einen Zeitraum von 3 Jahren. Als Lichtquelle für die hier vorgestellten Experimente wurde das Höchstfeld-Lasersystem des Bereichs B des Max-Born-Instituts Berlin verwendet. Zu Beginn der experimentellen Arbeiten handelte es sich dabei um ein 10TW-CPA-System, mit der Möglichkeit die Laserpulse bereits vorzeitig in einen zusätzlichen Freiluft-Kompressor auszukoppeln. Diese verkürzte Variante des Höchstfeld-Lasers besaß eine nominelle Spitzenintensität von  $1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$ . Nach Ablauf von gut 12 Monaten erfolgte dann eine Aufrüstung des Lasersystems zu 25TW, die eine Steigerung der nominellen Spitzenintensität des Gesamtsystems auf knapp  $1 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$  zum Ziel hatte. Infolgedessen ergeben sich experimentelle Daten aus zwei signifikant verschiedenen Intensitätsbereichen. Die Behandlung der Resultate in zwei getrennten Kapiteln trägt diesem Umstand Rechnung. Im Folgenden werden die Resultate der Experimente bei Intensitäten unterhalb von  $1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  vorgestellt, wie sie mit der vorausgekoppelten Variante des Lasersystems vor dem genannten Upgrade erzielt wurden.

### 4.1. Das 3TW-CPA-Lasersystem

Die Abbildung 4.1 zeigt schematisch den modularen Aufbau des von Dr. M.P. Kalashnikov und Mitarbeitern entwickelten [46] und unterhaltenen Höchstfeld-Lasersystems. Zur Erzeugung ultrakurzer Lichtpulse mit Energien im mJ-Bereich wird dabei das sog. *Chirped-Pulse-Amplification*-Verfahren (CPA)[47][48] eingesetzt. Zu Anfang werden in einem modengekoppelten Oszillator Lichtpulse bei der Zentralwellenlänge 795nm mit einer spektralen Bandbreite von 80nm erzeugt, wodurch eine Pulsdauer von 11fs erzielt wird. Als aktives Medium dient ein mit Titan dotierter Saphir-Kristall (Ti:Sa), der mit 5W bei 532nm gepumpt wird. Die Oszillator-Ausgangsleistung beträgt 160mW bei einer Repetitionsrate von 76MHz. Um bei der in den folgenden Stufen anstehenden Verstärkung des Energieinhaltes der Lichtpulse eine Zerstörung der eingesetzten Laserkristalle zu vermeiden, werden die Laserpulse durch den Einsatz von zwei Reflexionsgittern in Kombination mit zwei Hohlspiegeln auf ca. 700ps zeitlich gedehnt (*stretched*). Die zeitliche Verbreiterung beruht dabei auf dem Laufzeitunterschied der verschiedenen spektralen Komponenten jedes Lichtpulses. Nach Durchlaufen des *Stretchers* besitzen die Pulse einen sog. zeitlichen *Chirp*, d. h. die spektralen Komponenten liegen

#### 4. Experimente bei hohen Intensitäten

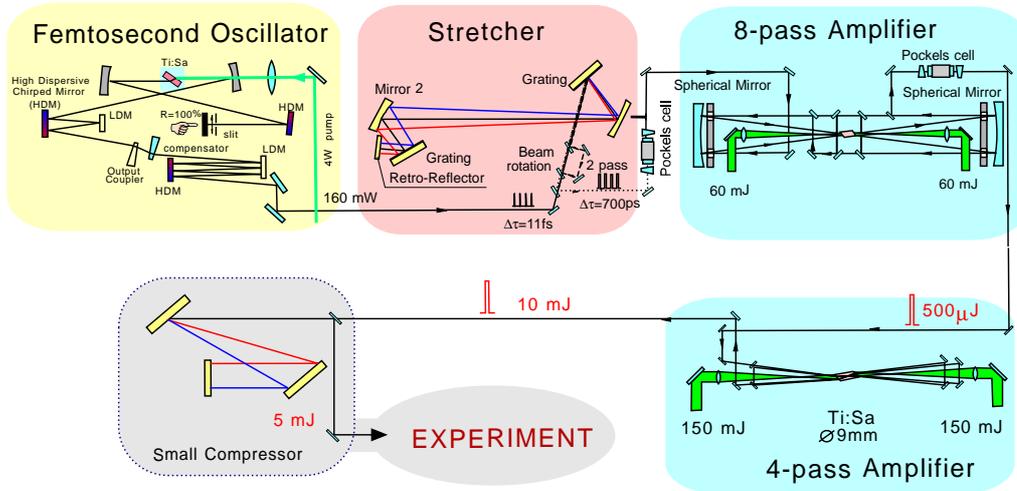


Abbildung 4.1.: Schematischer Aufbau des 3TW-CPA-Lasersystems. Zur Erzeugung von gepulsten Spitzenintensitäten bis  $1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  wird das Licht bereits nach dem ersten 4-Pass Verstärker des 10TW-Lasersystems in einen Freiluft-Kompressor ausgekoppelt. Dem Experiment stehen damit fs-Laserpulse bis maximal 5 mJ Pulsenergie bei 10 Hz Repetitionsrate zur Verfügung. ©Dr. M.P. Kalashnikov

zeitlich hintereinander innerhalb der verlängerten Pulsdauer. Die vorliegende *Stretcher*-Anordnung liefert Lichtpulse mit positivem Chirp, bei dem die langwelligen Spektralkomponenten zeitlich vor den kurzwelligeren Spektralanteilen liegen („rot kommt vor blau“). Die so gedehnten Pulse haben nun eine ausreichend geringe Intensität, um trotz ihres nach jeder Verstärkerstufe deutlich zunehmenden Energieinhaltes keine Schäden beim Durchlaufen der Verstärkerkristalle zu verursachen. Die im 10Hz-Takt eingekoppelten nJ-Oszillatorpulse werden in einem 8-fach Multipass-Verstärker und einem anschließenden 4-fach Multipass-Verstärker insgesamt um 6 Größenordnungen auf 10mJ Einzelpulsenergie verstärkt. Die einzelnen Verstärkerstufen sind durch Pockelszellen voneinander optisch isoliert, um keine Verstärkung von spontaner Emission (*ASE*) zu erlauben. Abschließend werden die Lichtpulse mit zwei Reflexionsgittern wieder zeitlich komprimiert, was eine Steigerung in der Intensität um 3-4 Größenordnungen bedeutet. Diese für die Experimente bereitgestellten hochintensiven fs-Lichtpulse haben eine Pulsenergie von 1-5 mJ bei einer Repetitionsrate von 10 Hz.

Die nach der zeitlichen Rekompensation erreichte Pulsdauer ist auch bei optimaler Justage des Kompressors immer größer als die Dauer der ursprünglichen Oszillatorpulse. Wesentliche Ursachen dafür sind die Verminderung der spektralen Bandbreite und eine mögliche Amplitudenmodulation des Pulsspektrums bei der Verstärkung sowie der nicht

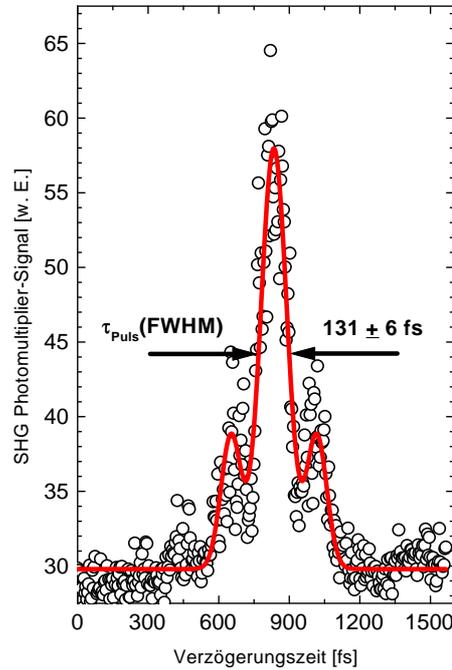


Abbildung 4.2.: SHG-Autokorrelationskurve des zeitlichen Profils der Intensitätsverteilung der Laserpulse des 3TW-Lasersystems. Jeder Messpunkt entspricht dem gemittelten Signal von 50 Lichtpulsen. Zur Bestimmung der vollen Halbwertsbreite (*FWHM*) der realen fs-Pulse aus der gemessenen Autokorrelationsfunktion (*ACF*) wurde ein zeitlich Gauß-förmiger Intensitätsverlauf angenommen (Faltungsfaktor  $\tau_{ACF}/\tau_{Puls} = \sqrt{2}$ ).

kompensierbare Einfluss höherer Ordnungen der Gruppengeschwindigkeits-Dispersion in den zur Strahlführung und -formung unerlässlichen optischen Komponenten des Lasersystems. Die Bestimmung der tatsächlich bei den Messungen verwendeten Pulsdauer ist daher unerlässlich. Für die hier vorgestellten Experimente erfolgt dies durch eine untergrundfreie *SHG*-Autokorrelationsmessung [49][50]. Dazu wird der zu vermessende fs-Lichtpuls in einem Michelson-Interferometer in zwei gleich starke Pulse aufgeteilt. Die parallel zueinander laufenden Teilpulse werden dann mit Hilfe einer Linse unter einem festen Winkel zueinander in einem nichtlinearen Kristall wieder aufeinander fokussiert. Das Autokorrelationssignal 2.Ordnung ergibt sich aus dem im nichtlinearen Kristall erzeugten frequenzverdoppelten Licht, das durch additive Überlagerung der Photonen aus beiden Teilpulsen entstanden ist (*SHG*). Während das frequenzverdoppelte Licht, welches durch Addition zweier Photonen aus ein und demselben Teilpuls entstanden ist, den

Kristall unter dem gleichen festen Winkel verlässt wie der unverdoppelte, fundamentale Anteil, erscheint das von beiden Teilpulsen gleichermaßen erzeugte Autokorrelationssignal unter  $0^\circ$  in der Mitte zwischen den beiden Fundamentalpulsen und besitzt daher keinen Untergrund an unverdoppelten Licht [51].

Einer der beiden Interferometer-Arme ist in der Länge verstellbar, so dass das Autokorrelationssignal in Abhängigkeit von der zeitlichen Verzögerung der beiden Teilpulse zueinander im *SHG*-Kristall aufgezeichnet werden kann. Ein typisches Resultat dieser Messungen zeigt die Abbildung 4.2. Um aus der Halbwertsbreite des Autokorrelationssignals die reale Dauer des ursprünglichen fs-Lichtpulses zu berechnen, ist eine Entfaltung der gemessenen Autokorrelationsfunktion notwendig. Bei Annahme eines spezifischen Intensitätsprofils für den realen Laserpuls ergibt sich dessen volle Halbwertsbreite (*FWHM*) zu einem Bruchteil der Halbwertsbreite der Autokorrelationsfunktion (*ACF*) [52]:

$$\text{Lorentz-Profil:} \quad I(t) \propto \frac{1}{1+t^2} \quad \Rightarrow \quad \text{Faltungsfaktor:} \quad \frac{\tau_{Puls}}{\tau_{ACF}} = \frac{1}{2} \quad (4.1)$$

$$\text{Sech-Profil:} \quad I(t) \propto \text{sech}^2[t] \quad \Rightarrow \quad \text{Faltungsfaktor:} \quad \frac{\tau_{Puls}}{\tau_{ACF}} = \frac{1}{\cosh[1]} \quad (4.2)$$

$$\text{Gauß-Profil:} \quad I(t) \propto \exp[-t^2] \quad \Rightarrow \quad \text{Faltungsfaktor:} \quad \frac{\tau_{Puls}}{\tau_{ACF}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \quad (4.3)$$

Zur absoluten Bestimmung der in den Experimenten eingesetzten Lichtintensität ist die Messung sowohl der Pulsdauer, der Pulsenergie sowie der Querschnittsfläche der Laserstrahlung im Bereich des Wechselwirkungsvolumens mit den Atomen notwendig.

$$I = \frac{E_{Puls}}{\tau_{Puls} A_{Puls}} = \frac{E_{Puls}}{\tau_{Puls} \pi w_0^2} \quad (4.4)$$

Das Erreichen der für die Untersuchungen der atomaren Ionisationsdynamik erforderlichen Intensitäten von  $10^{12} - 10^{16} \text{ W/cm}^2$  bedingt die Verwendung fokussierter Laserstrahlung.

$$1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2 \geq I_{Max} = \frac{5 \text{ mJ}}{130 \text{ fs} \pi w_0^2} \quad \Rightarrow \quad w_0 \leq 11 \mu\text{m} \quad (4.5)$$

In den vorliegenden Messungen wird dafür eine unbeschichtete BK7-Plankonvex-Linse verwendet. Die Vermessung des tatsächlich erzielten Fokusdurchmessers erfolgt durch Abbildung der Brennebene mittels eines Linsenteleskops (Vergrößerungsfaktor 40) auf die Sensorfläche einer CCD-Kamera (Pixelgröße  $26 \times 28 \mu\text{m}$ ). Abbildung 4.3 zeigt das erhaltene Fokus-Bild der besagten Linse mit einer Brennweite  $F_L = 160 \text{ mm}$ . Die daraus zu entnehmende räumliche Intensitätsverteilung in der Brennebene der Fokussierlinse besitzt in sehr guter Näherung ein radial Gauß-förmiges Profil, ihre im Rahmen der Gaußschen Strahlenoptik als Strahltaile bezeichnete Halbwertsbreite beträgt  $w_0 \approx 10 \mu\text{m}$ .

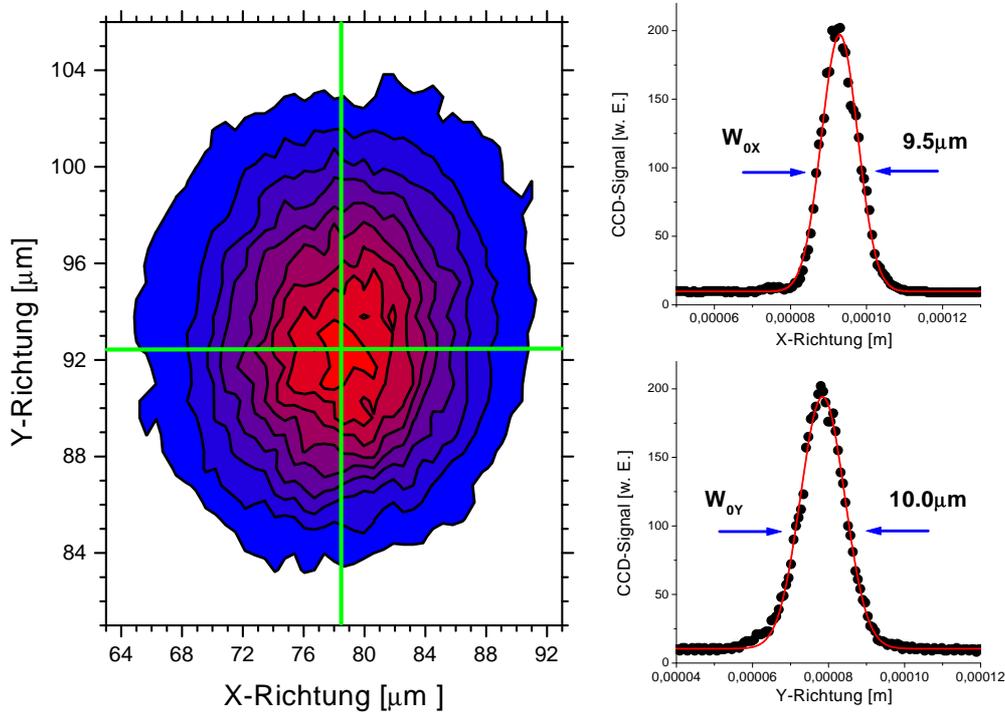


Abbildung 4.3.: CCD-Kamerabild der räumlichen Intensitätsverteilung eines einzelnen Laserpulses in der Brennebene der in den Experimenten verwendeten unbeschichteten BK7-Plankonvex-Linse ( $F_L = 160\text{mm}$ ,  $\varnothing = 30\text{mm}$ ). Ein-dimensionale Schnitte durch das Intensitätsmaximum ergeben in der Fokusebene ein radial Gauß-förmiges Abklingverhalten. Die Strahlweite bestimmt sich zu  $w_0 = 10.0 \pm 0.5 \mu\text{m}$ .

Damit sind von Seiten des Lasersystems alle notwendigen Voraussetzungen gegeben, um Experimente zur atomaren Ionisationsdynamik im Intensitätsbereich bis  $1 \cdot 10^{16} \text{W}/\text{cm}^2$  durchführen zu können.

## 4.2. Die Messapparatur (Targetkammer)

Zur Durchführung intensitätsabhängiger Messungen der Ionenausbeuten eines Ensembles neutraler Atome ist es erforderlich, die Intensität der eingestrahlten fs-Lichtpulse des 3TW-Lasersystems kontinuierlich kontrolliert zu variieren. Der nach dem Kompressor verfügbare Laserstrahl besitzt einen Durchmesser von ca.  $20\text{mm}$ , was eine unfokussierte Leistungsdichte des Lichts von  $3 \text{GW}/\text{cm}^2$  ergibt. Bei dieser Intensität kann

die Strahlführung in Luft erfolgen, ohne eine Verschlechterung der Strahleigenschaften, bzw. der Pulsform durch die Gruppengeschwindigkeits-Dispersion der Luft befürchten zu müssen. Daher ist es zweckmäßig, die optischen Komponenten zur Intensitätsabschwächung und Fokussierung der Laserpulse ebenfalls ausserhalb der notwendigerweise evakuierten Wechselwirkungszone mit den Atomen zu montieren. Die Abbildung 4.4 zeigt schematisch den gesamten Aufbau der verwendeten Messanordnung. Unter Einsatz einer drehbaren  $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte für 795nm und eines nachfolgenden Polarisations-Strahlteilerwürfels kann die Intensität des linear polarisierten Laserlichts variiert werden. Zur kontrollierten Rotation der  $\lambda/2$ -Platte ist diese an einen Schrittmotor angeschlossen, der von einem computerbasierten Messprogramm kontrolliert betrieben wird. Für die Erzeugung zirkular polarisierter Lichtpulse kann zusätzlich per Hand eine  $\lambda/4$ -Platte in den Laserstrahl geschoben werden. Schliesslich erfolgt die Fokussierung der fs-Pulse mit einer BK7-Plankonvex-Linse ( $F_L = 160\text{mm}$ ,  $\varnothing_L = 30\text{mm}$ ) in die Vakuumkammer hinein. Die Linse ist zur besseren Justage auf einem 3-achsigen Verschiebetisch montiert, damit die Brennebene optimal im Detektionszentrum eines hochauflösenden Flugzeit-Massenspektrometers[53] liegt. Dieses Spektrometer besteht aus einer Anordnung von 3 äquidistanten Feldplatten (Abstand 10mm), zwischen denen elektrische Spannungen von einigen hundert Volt angelegt werden können, um die im Lichtfokus produzierten Ionen abzusaugen. Hierfür befindet sich eine 2mm-Bohrung im Zentrum der mittleren Feldplatte, und die obere Feldplatte besteht nur aus einem Metallring (Innendurchmesser 10mm), der mit einem sein Zentrum abdeckenden Goldnetz elektrisch leitend verbunden ist. Die so aus dem Wechselwirkungsvolumen herausbeschleunigten Ionen durchlaufen nun eine feldfreie Driftstrecke (Länge 60mm) bis sie an deren Ende von einer Mikrokanalplatte (*MCP*) detektiert werden. Die Ionensignale werden dann durch einen Vorverstärker (Gain 10) geschickt und abschließend von zeitverzögert geschalteten Analog-Digital-Wandlern (*gated ADCs*, Auflösung 10Bit) nach Ladungszuständen getrennt aufintegriert. Die so registrierten, nach Flugzeitdauer aufgelösten *ADC*-Daten der produzierten ionischen Endprodukte werden von einem computerbasierten Messprogramm ausgelesen und abgespeichert.

Die je nach Stellung der  $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte variierende aktuelle Energie der einzelnen fs-Lichtpulse wird nach Durchlaufen der UHV-Kammer mit einer Photodiode Puls für Puls gemessen. Die Messwerte dieser zuvor mit einem pyroelektrischen Detektor kalibrierten Photodiode werden ebenfalls durch das Messprogramm aufgezeichnet.

Das Einbringen der zu ionisierenden Atome in den Bereich des Linsenfokus erfolgt im Falle von Gasen durch Fluten der gesamten Vakuum-Kammer. Zur Erzeugung von Metaldämpfen befindet sich ein entsprechend gefülltes, elektrisch beheizbares Edelstahlröhrchen (Länge 10-15mm,  $\varnothing 1.1\text{mm}$ ) knapp 20mm unterhalb des Schnittpunktes des Laserstrahls mit der Extraktions-Achse des Flugzeit-Q/M-Spektrometers.

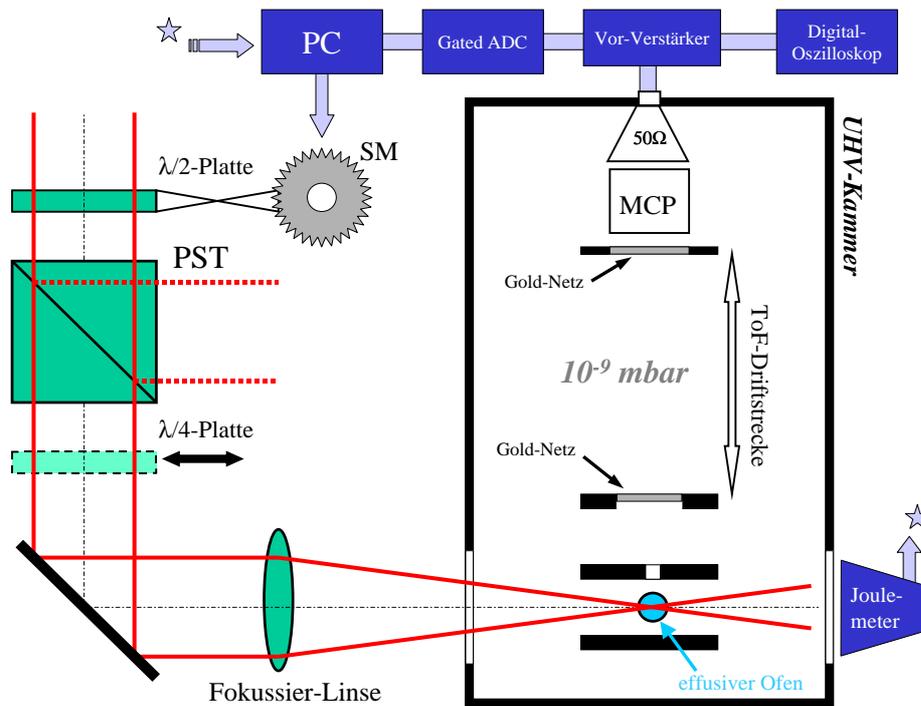


Abbildung 4.4.: Schema der Messanordnung für Spitzenintensitäten im Laserfokus bis  $1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$ . Die kontrollierte Variation der Pulsenergie des linear polarisierten Laserlichts erfolgt durch Kombination einer per Schrittmotor rotierbaren  $\lambda/2$ -Platte mit einem Polarisations-Strahlteiler (PST). Zur Erzeugung zirkular polarisierten Lichts kann zusätzlich eine  $\lambda/4$ -Platte in den Strahlengang gestellt werden. Die Lichtpulse werden schließlich mit einer BK7-Plankonvex-Linse ( $F_L = 160 \text{ mm}$ ,  $\varnothing_L = 30 \text{ mm}$ ) zwischen die Feldplatten des Flugzeit-Massenspektrometers in die UHV-Kammer fokussiert.

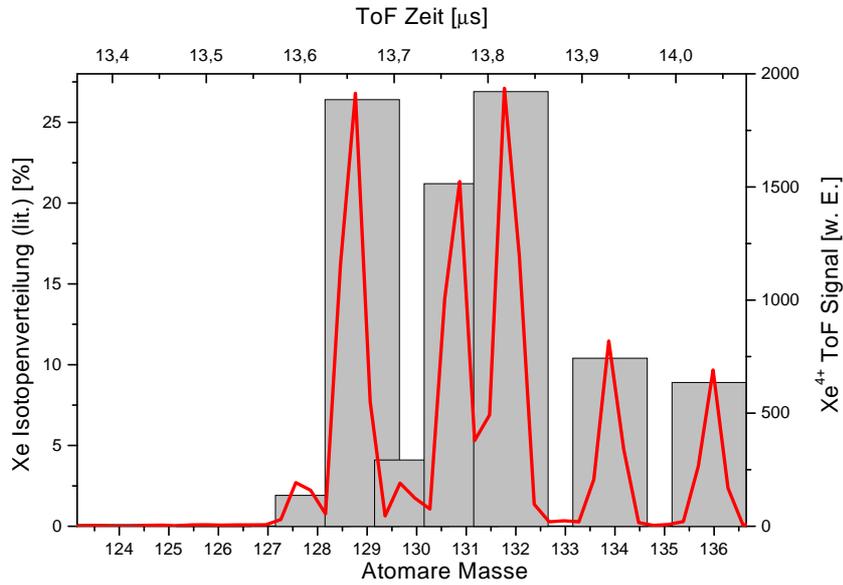


Abbildung 4.5.: Das Flugzeit-Signal von Xenon<sup>4+</sup> zeigt deutlich die natürliche Isotopenverteilung von Xenon und belegt damit die gute Massen-Auflösung der verwendeten 3-Platten-Anordnung zur Flugzeit-Q/M-Spektrometrie.

### 4.3. Ionisationsdynamik He-ähnlicher Systeme: Messungen an Calcium und Indium-I

Die bei Helium beobachtete signifikante Überhöhung der Ionenausbeute des zweiten Ladungszustandes gegenüber den auf rein sequentieller Ionisation basierenden Erwartungen wird als ein Beitrag simultaner Doppelionisation interpretiert. Dieses Phänomen ist ebenso bei den anderen Edelgas-Elementen und auch für deren höhere Ladungszustände experimentell nachgewiesen. Das Ausmaß dieser nicht-sequentiellen Überhöhung beträgt im Helium bis zu 6 Größenordnungen, was in dieser Deutlichkeit von keinem anderen bislang vermessenen Element erreicht wird. Dieser Umstand deutet auf eine besonders starke Korrelation der beiden 1s-Elektronen im Helium hin. Zum besseren Verständnis der Ionisationsdynamik wäre es daher wünschenswert, wenn es eine Möglichkeit zur systematischen Variation der elektronischen Parameter dieses fundamentalen 2-Elektronen-Systems gäbe. Da eine direkte Einflußnahme auf die relevanten atomaren Eigenschaften des 1s<sup>2</sup>-He-Orbitals (Bindungsenergien, elektronische Konfiguration, „Korrelations-Stärke“) leider nicht möglich ist, verbleibt als Ausweg nur die Untersuchung He-ähnlicher 2-Elektronen-Systeme in anderen Atomen.

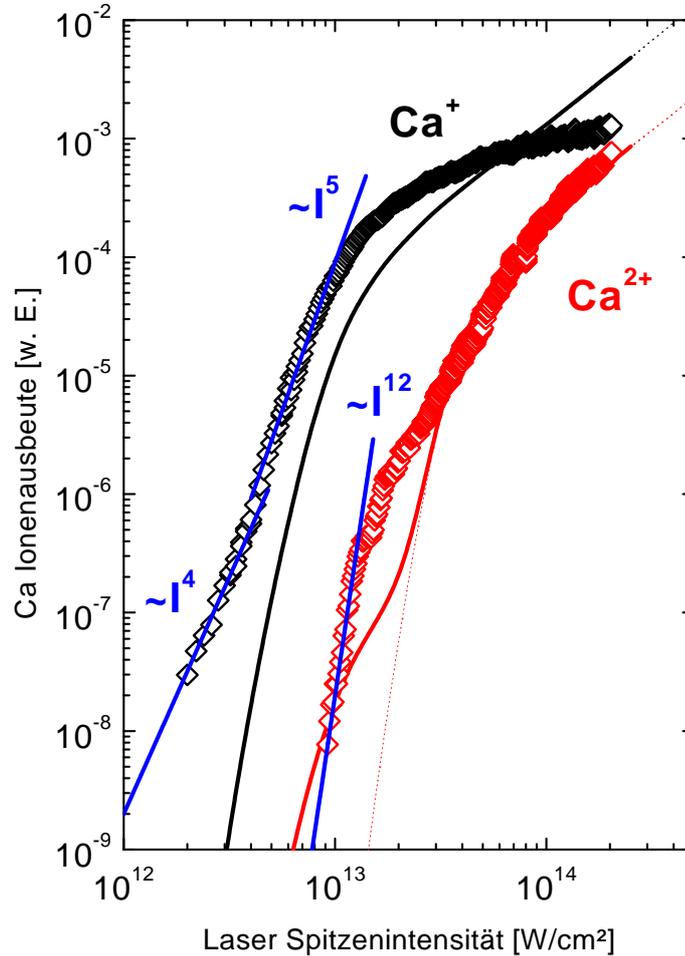


Abbildung 4.6.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Calcium im Vergleich zu Modellrechnungen nach ADK (gepunktete Linien) und dem *Shake*-Modell mit der empirischen Formel (ausgezogene Linien,  $I_{\text{Ref}} = 1.0 I_{\text{Sätt}}$ ). Wie erwartet wird dieser Intensitätsbereich unterhalb von  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> eindeutig von Multiphoton-Ionisation geprägt. Die rein auf Tunnelionisation basierenden theoretischen Kurven sind daher nicht in der Lage, eine zufriedenstellende Modellierung der gemessenen Ionenausbeuten zu liefern.

Als mögliche Kandidaten für ein mit Helium vergleichbares  $ns^2$ -Orbital ausserhalb eines stark gebundenen, in sich abgeschlossenen ionischen Rumpf-Systems kommen die Elemente der zweiten Hauptgruppe, die Erdalkaliatome in Frage. Die Bindungsenergien ihrer beiden äußeren s-Elektronen besitzen ebenso wie Helium ein Verhältnis von etwa 1:2. Der entscheidende Nachteil ist jedoch, dass die absolute Größe der totalen Bindungsenergie der Valenzelektronen bei den Erdalkali-Elementen sehr viel geringer ist als bei Helium (Be : 28 eV, Mg : 23 eV, Ca : 18 eV, Sr : 17 eV, Ba : 15 eV  $\leftrightarrow$  He : 79 eV). Dies hat zur Folge, dass die durch Bestrahlung mit fs-Laserpulsen produzierten Ionenausbeuten der Erdalkali-Elemente schon bei moderaten Lichtintensitäten die Volumensättigung erreichen ( $I_{\text{Sätt}}(\text{Ba}^{2+} \dots \text{Be}^{2+}) = 6 \cdot 10^{14} \dots 2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ). In diesem Intensitätsbereich werden die Ionisationsprozesse aber immer noch von Multiphoton-Ionisation geprägt (Keldysh-Parameter  $\gamma \approx 0.3 \dots 0.4$ ). Abbildung 4.6 belegt diesen Sachverhalt anhand der gemessenen Ionenausbeuten von  $\text{Ca}^+$  und  $\text{Ca}^{2+}$ . Die resultierenden Anstiege der Messkurven lassen sich in guter Übereinstimmung mit den Vorhersagen aus Störungsrechnungen n-ter Ordnung erklären, was eindeutig auf nicht-resonante Mehrphotonenabsorption als dominierendem Ionisationsmechanismus hinweist (vgl. S.6). Die theoretischen Kurven aus Modellrechnungen nach ADK sowie mit der empirischen Formel im Rahmen des *Shake*-Modells, die ausschließlich Tunnelionisation berücksichtigen, liefern dementsprechend keine zufriedenstellende Erklärung für das gemessene Ionisationsverhalten von Calcium. Die Suche nach Elementen mit einem mit Helium vergleichbaren 2-Elektronen-Orbital muss also weitergehen.

Wie sich zeigen wird, besitzt das Element Indium eine Reihe von Eigenschaften, die es als einen möglichen Prototyp zum Studium der Ionisationsdynamik eines He-ähnlichen Systems auszeichnen.

<b>Indium</b>	Konfiguration:	[Kr]	4d <sup>10</sup>	5s <sup>2</sup>	5p
	$E_{\text{ion}}[\text{eV}]$ :	...	..., 54	28.044, 18.870	5.786
	$I_{\text{Sätt}}[\text{W/cm}^2]$ :	...	..., $2.1 \cdot 10^{15}$	$2.8 \cdot 10^{14}$ , $1.3 \cdot 10^{14}$	$4.5 \cdot 10^{12}$

Das intensitätsabhängige Ionisationsverhalten von Indium<sup>+</sup>-Ionen ist mit der Situation in Helium vergleichbar. Aufgrund der recht niedrigen Bindungsenergie des 5p-Elektrons ist neutrales Indium bei Spitzenintensitäten oberhalb  $10^{13} \text{ W/cm}^2$  im Fokuszentrum bereits nicht mehr vorhanden, bevor die Ionisation des 5s<sup>2</sup>-Orbitals möglich wird. Daher stehen nur In<sup>+</sup>-Ionen als Ausgangszustand für die Produktion von In<sup>2+</sup> u. In<sup>3+</sup> zur Verfügung. Der energetische Abstand zur 4d-Unterschale ist ebenfalls groß genug, um keinen nennenswerten Beitrag an In<sup>4+</sup>-Ionen zu erhalten, bevor nicht In<sup>2+</sup> und auch In<sup>3+</sup> die Volumensättigung erreicht haben. Die rein sequentielle Ionisierbarkeit des ersten 5s-Elektrons ist damit genauso gewährleistet wie der Umstand, dass die elektronische Struktur des ionischen Rumpfes keinen Einfluß auf die Ionisationsdynamik des 5s<sup>2</sup>-Orbitals ausübt. Beides sind wichtige Voraussetzungen für die geforderte He-Ähnlichkeit eines Modellsystems. Zudem besitzen die beiden 5s-Elektronen des In<sup>+</sup>-Ions genügend hohe Ionisationsschwellen um zu gewährleisten, dass Tunnelionisation

der maßgebliche Prozess zur Entleerung des  $5s^2$ -Orbitals ist. Schließlich besitzen die beiden s-Elektronen im Indium<sup>+</sup> signifikant andere Bindungsenergien als in Helium, um wirklich als ein unabhängiges Modell für die Ionisationsdynamik eines heliumartigen 2-Elektronen-Systems dienen zu können.

Die experimentellen Arbeiten zur Ionisationsdynamik von Indium<sup>+</sup> wurden maßgeblich von Dr. H. Maeda im Rahmen seines von der Alexander-von-Humboldt-Stiftung finanzierten Gastaufenthaltes am Max-Born-Institut durchgeführt. Das Resultat der Messungen der intensitätsabhängigen Ionenausbeuten von Indium<sup>+</sup> bei linearer Polarisation der fs-Lichtpulse zeigt Abbildung 4.7. Es ist deutlich eine Überhöhung der Ionenausbeute von In<sup>3+</sup> gegenüber den Vorhersagen der rein sequentiellen ADK-Theorie zu beobachten. Ihr Betrag von ca. 1.5 Größenordnungen bei  $2.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  fällt allerdings geringer aus als bei Helium (bis zu 6 Größenordnungen bei  $1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ , vgl. Abb.2.4). Trotz der klar unterschiedlichen totalen Bindungsenergien von Helium und Indium<sup>+</sup> (He 79eV  $\leftrightarrow$  In<sup>+</sup> 47eV) sowie einem anderen Teiler-Verhältnis ihrer Ein-Elektronen-Potentiale (He 1:2  $\leftrightarrow$  In<sup>+</sup> 2:3) wird auch für das unabhängige Modellsystem Indium<sup>+</sup> ein Beitrag an simultaner Doppelionisation eindeutig nachgewiesen. Bemerkenswert ist zudem die Tatsache, dass das Verhältnis von Doppel- zu Einfach-Ionisation bei Indium<sup>+</sup> sehr viel größer ist als bei Helium (He<sup>2+</sup>/He<sup>+</sup>  $\approx$  0.002  $\leftrightarrow$  In<sup>3+</sup>/In<sup>2+</sup>  $\approx$  0.1). Der quantitative Verlauf der gemessenen Ionenausbeuten kann abermals unter Verwendung der empirischen Formel zur Modellierung der nicht sequentiellen Anteile an den Ionisationsprozessen mit guter Übereinstimmung berechnet werden.

Der Einfluss der Polarisation des Laserlichts auf die zu beobachtenden Ionenausbeuten ist ebenfalls untersucht worden. Dabei ist zu beachten, dass zur Mehrfach-Ionisation mit zirkularem Licht höhere Intensitäten benötigt werden als bei linear polarisiertem Licht ( $I_{\text{Lin}}/I_{\text{Zirk}} = \sqrt{2}$ ). Wie die bereits in Abbildung 2.6 auf Seite 15 vorgestellten Messergebnisse zeigen, wird bei Verwendung zirkular polarisierter fs-Lichtpulse ein rein sequentielles Ionisationsverhalten aller Ladungszustände registriert. Dieser Tatbestand wird bekanntermaßen als Indiz für die Gültigkeit des sog. *Rescattering*-Modells zur Beschreibung des nicht-sequentiellen Ionisationsmechanismus gewertet (vgl. S. 17). Die mit der simultanen Freisetzung mehrerer Elektronen durch Stoßionisation verbundene Rückkehrbedingung des ersten im äußeren Lichtfeld beschleunigten Elektrons kann nur im Falle linearer Lichtpolarisation erfüllt werden. Bei zunehmender Zirkularpolarisation des Laserlichts wird dieses Elektron auf eine elliptische Bahn gezwungen, deren minimaler Rückkehr-Abstand zum Atomkern nach ca. drei Vierteln der Periodendauer des äußeren Wechselfeldes immer größer wird und seine Stoß-Wahrscheinlichkeit mit den am ionischen Rumpfatom verbliebenen anderen Elektronen nimmt rapide ab. Die resultierende Unterdrückung nicht-sequentieller Ionisationsprozesse wird letztlich durch korrekte Beschreibung der Messkurven mit dem rein sequentiellen ADK-Modell nachgewiesen.

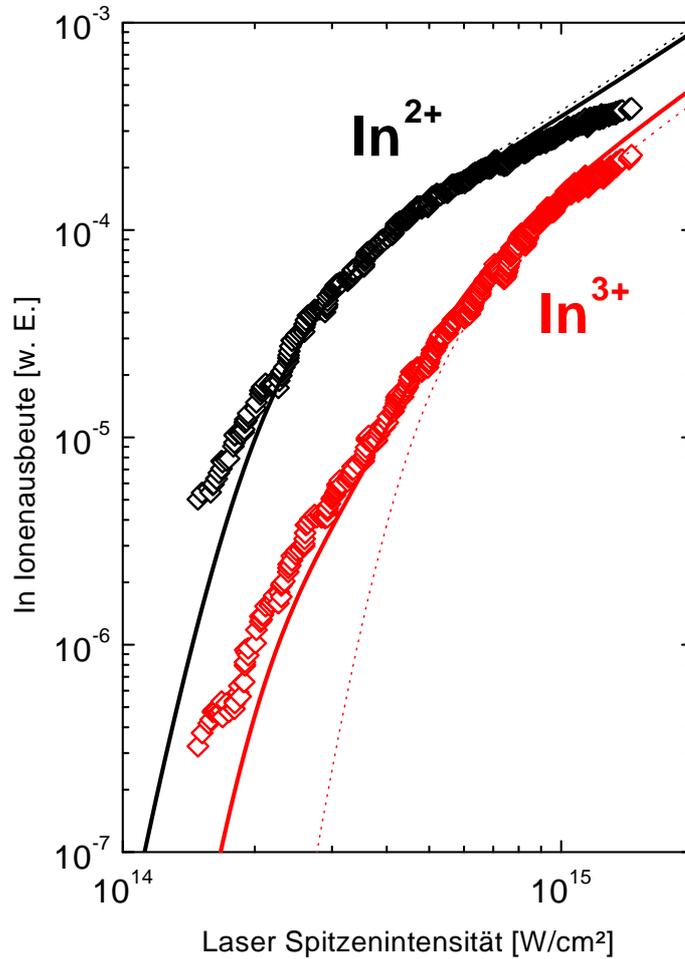


Abbildung 4.7.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Indium<sup>+</sup> im Vergleich zu Modellrechnungen nach ADK (gepunktete Linien) und mit der empirischen Formel (ausgezogene Linien). Jeder Messpunkt entspricht dem gemittelten Signal von 300 Lichtpulsen. Zur Anpassung der Messdaten an die theoretischen Kurven wurden die gemessenen Intensitätswerte mit dem Faktor 0.8 multipliziert, was innerhalb der Fehlergrenzen der experimentellen Intensitätsbestimmung liegt:

$$\Delta I_{\text{Exp}} = \Delta E_{\text{Puls}} + \Delta \tau_{\text{Puls}} + 2 \Delta w_0 = \pm 25\%.$$

## 4.4. Experimente zur Ionisationsdynamik an Krypton

Neben den Messungen an heliumartigen 2-Elektronen-Systemen wurde die zur Verfügung stehende Apparatur auch für weitergehende Experimente an anderen Elementen genutzt. Die vor allem in der Arbeitsgruppe von S.L. Chin durchgeführten systematischen Untersuchungen zur Ionisationsdynamik von Edelgasen in hochintensiven fs-Lichtfeldern beschränkten sich bislang auf die Vermessung der jeweils ersten beiden, bzw. ersten drei Ladungszustände von Neon, bzw. Argon und Krypton sowie der ersten 6 Ionisationsstufen von Xenon [14][40][18]. Da der mit der vorliegenden Messanordnung zugängliche Intensitätsbereich auch die Erzeugung von Krypton<sup>4+</sup> in ausreichendem Maße ermöglicht, stellt die eigene Untersuchung des Ionisationsverhaltens der ersten 4 Ladungszustände von Krypton eine sinnvolle Erweiterung der bekannten Datenmenge dar.

Die Abbildung 4.8 zeigt das Ergebnis der Messungen der intensitätsabhängigen Ionenausbeuten von Kr<sup>+</sup> bis Kr<sup>4+</sup>. Auch für die 4. Ionisationsstufe lässt sich ein vergleichbares Verhalten wie bei ihren beiden mindergeladenen benachbarten Ladungszuständen beobachten. Die Ionenausbeute von Kr<sup>4+</sup> wird unterhalb von  $1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  durch simultane Doppelionisation von Kr<sup>2+</sup> signifikant beeinflusst. Ein möglicher Beitrag zur Kr<sup>4+</sup>-Ausbeute von simultaner Dreifach-Ionisation von Kr<sup>+</sup> liegt leider ausserhalb des zugänglichen Messbereichs. Bei Verwendung eines Lasersystems mit höherer Repetitionsrate als der hier verfügbaren 10Hz sollte der Nachweis jedoch prinzipiell mit vertretbarem Zeitaufwand gelingen. Nachdem die Kr<sup>2+</sup>-Ausbeute oberhalb von  $1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  in die Volumensättigung gerät, ist die Produktion von Kr<sup>4+</sup> nur noch durch sequentielle Ionisation von Kr<sup>3+</sup> möglich. Ab  $2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  lassen sich daher die Messdaten mit den Vorhersagen nach dem ADK-Modell gut erklären. Bis zum Erreichen der Volumensättigung des jeweiligen Ladungszustandes ist jedoch wieder die empirische Formel ein adäquates Mittel zur Beschreibung der nicht-sequentiellen Anteile am Ionisationsprozess, um eine zufriedenstellende Übereinstimmung mit den gemessenen Kurven zu erzielen. Eine noch bessere Reproduktion der Messdaten ist bislang nur mit Modellrechnungen nach der sehr viel aufwendigeren, weil komplexeren, aber dafür eben auch exakteren S-Matrix-Theorie möglich[19].

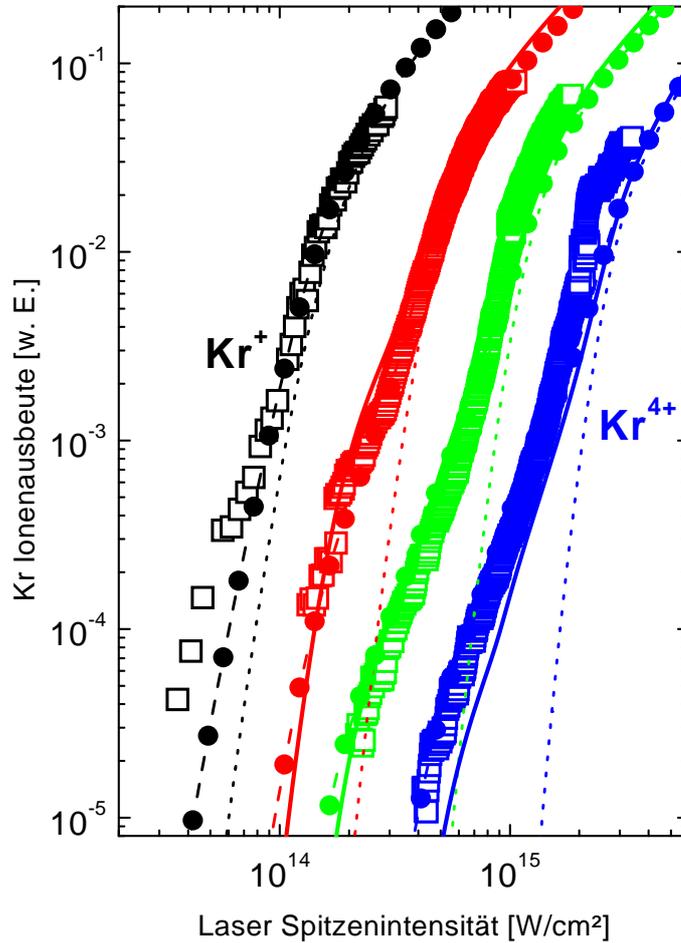


Abbildung 4.8.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Krypton (offene Symbole) im Vergleich zu Modellrechnungen nach ADK (gepunktete Linien) und mit der empirischen Formel zur Berücksichtigung nicht-sequentieller Prozesse (ausgezogene Linien) sowie den kalkulierten Kurven der S-Matrix-Theorie (gestrichelte Linien mit gefüllten Symbolen). Jeder Messpunkt entspricht dem gemittelten Signal von 100 Lichtpulsen. Zur Anpassung der Messdaten an die theoretischen Kurven wurden die gemessenen Intensitätswerte mit dem Faktor 0.8 multipliziert, was innerhalb der Fehlergrenzen der experimentellen Intensitätsbestimmung liegt:  
 $\Delta I_{\text{Exp}} = \Delta E_{\text{Puls}} + \Delta \tau_{\text{Puls}} + 2 \Delta w_0 = \pm 25\%$ .

Wie zuvor schon bei der Suche nach einem mit Helium vergleichbaren 2-Elektronen-System erwähnt, wäre die Möglichkeit der systematischen Variation der elektronischen Parameter eines atomaren Modellsystems sehr wünschenswert, um aus den unmittelbaren Veränderungen in der Ionisationsdynamik aufgrund der gezielten Modifikation eines einzigen Parameters ein besseres Verständnis der die Dynamik prägenden physikalischen Mechanismen zu erlangen. Die Grundzustands-Konfigurationen der in der Natur vorkommenden Elemente bilden dagegen nur eine unvollständige Menge stabiler Parameterkombinationen. Die Vermessung eines kleinen Teils dieser natürlichen Parametersätze hat bereits ansehnliche Fortschritte zur Erklärung der Mehrelektronen-Ionisationsprozesse in hochintensiven Lichtfeldern erbracht. Die Erweiterung der experimentellen Untersuchungen auf die ionischen Grundzustände der Atome kann wie im Falle von Indium<sup>+</sup> helfen, dem Experiment eine zusätzliche Gruppe von unabhängigen Parameterkombinationen zugänglich zu machen. Eine konsequente Fortführung dieses Gedankens ist die Erkenntnis, dass bei Verwendung elektronisch **angeregter** atomarer oder ionischer Zustände ein fast unerschöpflicher Parameterraum für die Untersuchung der atomaren Ionisationsdynamik erschlossen werden kann.

Eine genauere Analyse der Situation liefert jedoch eine Reihe von experimentellen Anforderungen, die ein vor dem Eintreffen des ionisierenden fs-Laserpulses in einem elektronischen Anregungszustand präpariertes Teilchen-Ensemble erfüllen muss, wenn aus seinem Ionisationsverhalten neue wesentliche Erkenntnisse über die atomare Dynamik gewonnen werden sollen. Ein Großteil der im Fokusvolumen enthaltenen Teilchen sollte sich im angeregten Zustand befinden. Bei Präparation des atomaren (oder ionischen) Zustandes durch optische Anregung mit Laserlicht kann maximal eine Gleichbesetzung von angeregtem Zustand und dem ursprünglichen Grundzustand erreicht werden. Ohne zusätzlichen experimentellen Aufwand zur weiteren Anreicherung der präparierten Zustände im Laserfokus, etwa durch Aus-Separation der Grundzustands-Atome, werden die Messergebnisse weitgehend von der Ionisation aus dem Grundzustand überlagert. Die Ionenausbeuten aus dem Grundzustand werden so maximal um den Faktor 2 abgesenkt [54]. Bei einem zu geringen Anteil an präparierten Atomen im Laserfokus setzt außerdem die Volumensättigung des angeregten Zustandes bei viel geringeren Schwellenintensitäten ein. Der Intensitätsbereich, in dem noch simultane Mehrfachionisation beobachtet werden kann, wird stark eingeschränkt. Außerdem muss die reduzierte Bindungsenergie des angeregten Zustandes immer noch groß genug sein, um ein eindeutig durch Tunnelionisation geprägtes Ionisationsverhalten aufzuweisen. Die Beachtung dieser Voraussetzungen führt zu einer sehr starken Einschränkung potentieller Kandidaten bei der sinnvollen Wahl eines angeregten Ausgangszustandes zur Mehrelektronenionisation einer Atomsorte mit hochintensiven Lichtpulsen.

Als eine erste Demonstration dieser neuen Klasse von Experimenten zur atomaren Ionisationsdynamik angeregter Systeme zeigt die Abbildung 4.9 die intensitätsabhängige Ionenausbeute von Krypton<sup>+</sup> aus dem metastabilen Zustand Kr\* heraus. Die Erzeugung der metastabilen Kryptonatome erfolgt in einer Atomstrahlquelle durch Elektronenstoß-

angregung in einer Gasentladung. Das Krypton-Gas verlässt die Atomstrahlquelle in Form eines gut kollimierten kalten Überschalldüsenstrahls [55][56], der auf das Fokusvolumen der fs-Lichtpulse im Detektionszentrum des Flugzeit-Spektrometers ausgerichtet ist. Der Anteil metastabiler  $\text{Kr}^*$ -Atome im Strahl beträgt ca. 1%; dies entspricht einer Teilchen-Flußdichte von etwa  $5 \cdot 10^{13}$  Atomen  $\text{sr}^{-1} \text{s}^{-1}$ .

Die Anregung der Krypton-Atome in einen metastabilen Zustand bewirkt eine signifikante Reduzierung der Bindungsenergie gegenüber dem Grundzustand. Daraus ergibt sich eine erhöhte Ionenausbeute von  $\text{Kr}^+$ , die schon unterhalb von  $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ein deutliches Messsignal liefert. Aufgrund des geringen Anteils metastabiler Atome im Strahl setzt bereits frühzeitig eine Sättigung der  $\text{Kr}^+$ -Ionenausbeute ein. Oberhalb von  $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  erfolgt in stark zunehmendem Maße auch die Tunnelionisation aus dem Grundzustand heraus und der intensitätsabhängige Verlauf des  $\text{Kr}^+$ -Signals wird dann von der Ionisation aus dem Grundzustand dominiert.

In der vorliegenden Form kann eine solche Messung daher keine wirklich neuen Erkenntnisse der Ionisationsdynamik von Krypton liefern. Um etwa eine Veränderung der simultanen Doppelionisation von  $\text{Kr}^{2+}$  beobachten zu können, muss eine frühzeitige Sättigung der Ionisation von  $\text{Kr}^*$  vermieden werden und eine wirksame Unterdrückung der Ionisation aus dem Grundzustand erfolgen. Dies ist nur durch eine starke Anreicherung von metastabilen Kryptonatomen im Fokusvolumen erreichbar. Eine Möglichkeit hierfür bietet die bereits in der Atomoptik vielfach erprobte Methode der Separation von metastabilen und nicht angeregten Atomen durch transversale Ablenkung des metastabilen Anteils mittels abgestimmter CW-Laserstrahlung (transversale Laserkühlung von Atomen). Dies bewirkt eine dramatische Reduzierung des Anteils an Grundzustandsatomen im Atomstrahl vor Erreichen der Wechselwirkungszone mit dem fs-Laser. Der damit verbundene apparative Mehraufwand übersteigt jedoch die vor Ort zur Verfügung stehenden experimentellen Kapazitäten.

Auf eine Fortführung der Untersuchungen zur Ionisationsdynamik atomarer, angeregter Systeme wurde nicht zuletzt auch wegen der bevorstehenden Aufrüstung des Lasersystems verzichtet. Die Nutzung der fs-Lichtpulse eines 25TW-Lasers erschließt einen viel größeren Intensitätsbereich und eröffnet damit eine ganze Reihe neuer Möglichkeiten, die bestehenden theoretischen und empirischen Modelle zur Beschreibung der Ionisationsmechanismen an bislang experimentell nicht zugänglichen atomaren Systemen auf ihre dauerhafte Gültigkeit hin zu überprüfen.

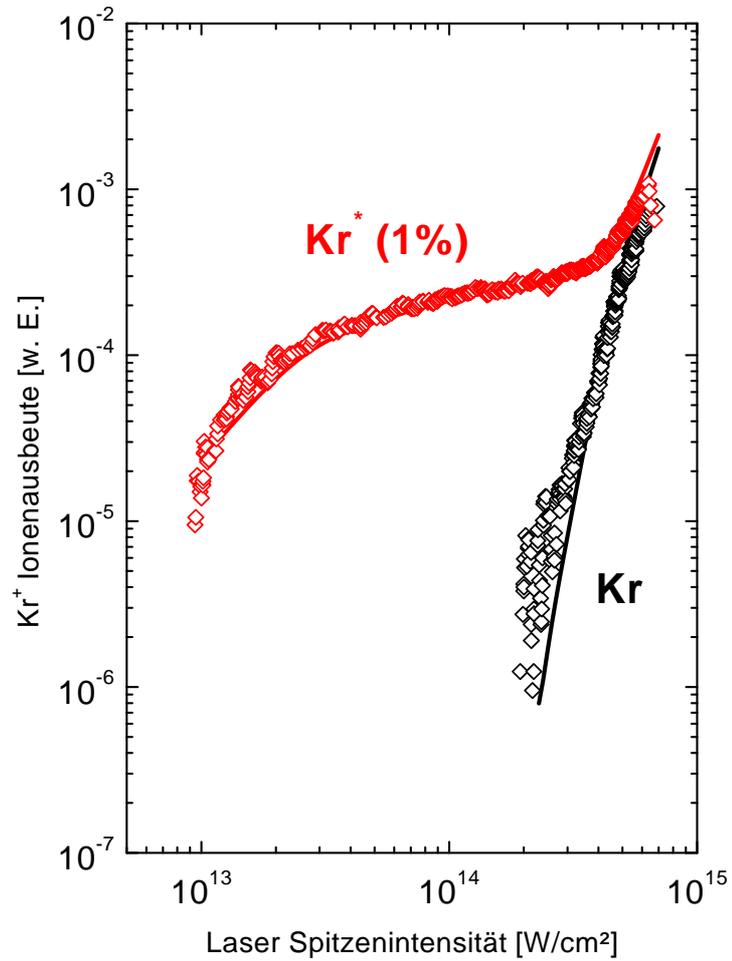


Abbildung 4.9.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Krypton<sup>+</sup> aus dem Grundzustand heraus und bei vorheriger Anregung in den metastabilen Zustand. Zum Vergleich die nach ADK-Modellrechnungen erwarteten Ausbeuten (ausgezogene Linien).

## 5. Experimente bei höchsten Intensitäten

Die Aufrüstung des Höchstfeld-CPA-Lasersystems im Bereich B des Max-Born-Instituts auf eine nominelle Spitzenleistung von 25TW bewirkt eine Reihe von einschneidenden Veränderungen für die Untersuchungen der atomaren Ionisationsdynamik. Die Steigerung der maximal einsetzbaren Pulsenergie um 2 Größenordnungen ermöglicht nun Messungen bei Intensitäten deutlich oberhalb von  $1 \cdot 10^{16} \text{W/cm}^2$ , die bei Fokussierung der Laserpulse nominell erreichbare Spitzenintensität liegt bei ca.  $1 \cdot 10^{19} \text{W/cm}^2$ . Die damit verbundene sehr hohe Energiedichte schon des noch unfokussierten Laserlichts erzwingt für den kontrollierten Umgang mit solchen fs-Lichtpulsen neue experimentelle Randbedingungen, die eine komplette Neukonzeption der Messapparatur zur Folge haben. So muss nach erfolgter Kompression der hoch verstärkten Lichtpulse der Strahlengang vollständig im Vakuum geführt werden, da sonst die Gruppengeschwindigkeits-Dispersion der Luft einen schädigenden Einfluss auf Pulsdauer und Strahlqualität des Laserlichts haben würde. Dementsprechend ist es nicht länger möglich, für die Strahlführung und -formung optische Komponenten in Transmission einzusetzen. Zudem beträgt der Strahldurchmesser der unfokussierten Lichtpulse nach dem Kompressor nun ca. 60mm.

Um diesen neuen experimentellen Anforderungen gerecht werden zu können, wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit eine komplett neue Messapparatur aufgebaut, deren zentrale Komponente eine eigens neu konstruierte UHV-Targetkammer ist, in der mit einem Parabolspiegel die fs-Lichtpulse außeraxial fokussiert werden. Ein zweiter Schwerpunkt war der Bau eines optischen Abschwächers zur kontrollierten Intensitätsvariation, der nur reflektierende Komponenten enthält.

### 5.1. Das 25TW Lasersystem

Die Abbildung 5.1 zeigt den modularen Aufbau des kompletten CPA-Lasersystems zur Erzeugung der in den Messungen eingesetzten fs-Lichtpulse. Die wesentliche Änderung gegenüber dem zuvor verwendeten System (vgl. S. 46) besteht in einer vollständig überarbeiteten Verstärker-Kette nach dem *Stretcher*. So dient nun ein regenerativer Verstärker als erste Stufe, gefolgt von zwei ebenfalls neu entwickelten Multipass-Verstärkerstufen. Vor dem Eintritt in die evakuierte Kompressor-Kammer durchlaufen die Laserpulse dann noch den optischen Abschwächer. Die wieder auf fs-Dauer komprimierten nun höchstintensiven Lichtpulse haben eine Pulsenergie von bis zu 500mJ bei einer Re-

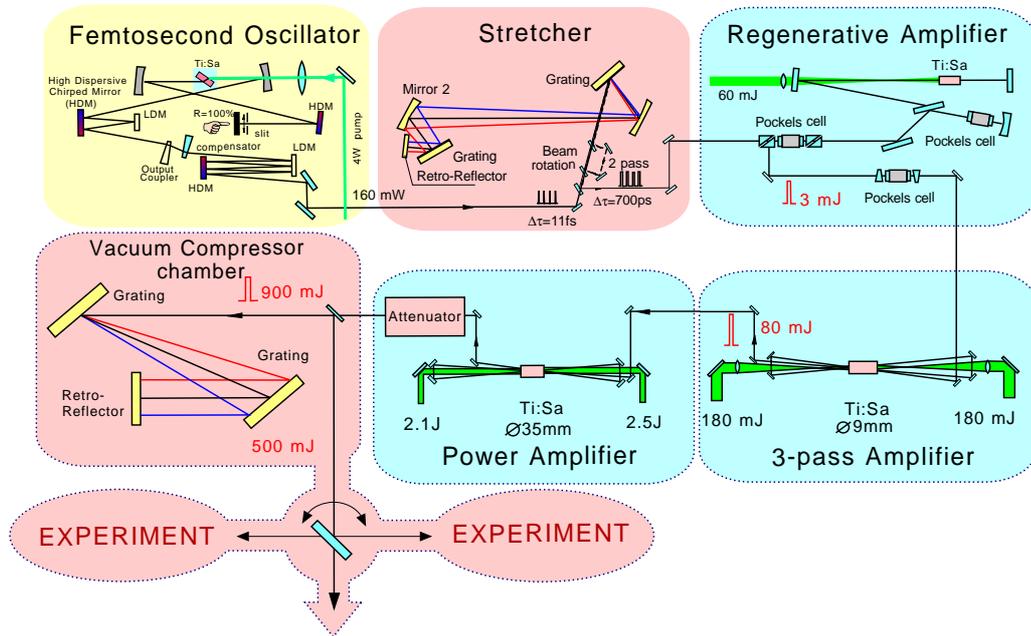


Abbildung 5.1.: Schematischer Aufbau des CPA-Lasersystems zur Erzeugung von gepulsten Spitzenintensitäten bis  $1 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$ . ©Dr. M.P. Kalashnikov

petitionsrate von 10 Hz. Ein verzweigtes System evakuierter Rohrleitungen ermöglicht schließlich die gleichzeitige Anbindung mehrerer Targetkammern an das Lasersystem. Die Strahlführung kann ohne Einbruch des Vakuums innerhalb weniger Minuten umgestellt werden, so dass die fs-Laserpulse abwechselnd verschiedenen Messapparaturen als Lichtquelle zur Verfügung gestellt werden können.

Die für intensitätsabhängige Messungen der Ionenausbeuten unbedingt erforderliche, kontrollierte, kontinuierliche Variation der Lichtintensität erfolgt diesmal bereits innerhalb des Lasersystems durch einen speziellen optischen Abschwächer. Wie Abbildung 5.2 zeigt, besteht dieser aus zwei polarisierenden Spiegeln, deren Reflexionsvermögen vom Einfallswinkel der linear polarisierten Lichtpulse abhängt. Durch die verwendete dielektrische Beschichtung wird nur der senkrecht zur Einfallsebene polarisierte Anteil des Laserlichts maximal reflektiert. Bei Drehung eines solchen Spiegels um die optische Achse der eingestrahlten Lichtpulse verhält sich dieser wie ein Polarisationsfilter, allerdings in Reflexion. Durch die Kombination zweier Spiegel hintereinander soll eine noch bessere Filterwirkung erzielt werden, um das Maß der maximalen Lichtschwächung entsprechend zu vergrößern. Auf diese Weise lässt sich die Pulsenergie maximal um den Faktor 25 reduzieren, was eine im Experiment nutzbare Intensitätsabschwächung von etwas mehr als einer Größenordnung bewirkt.

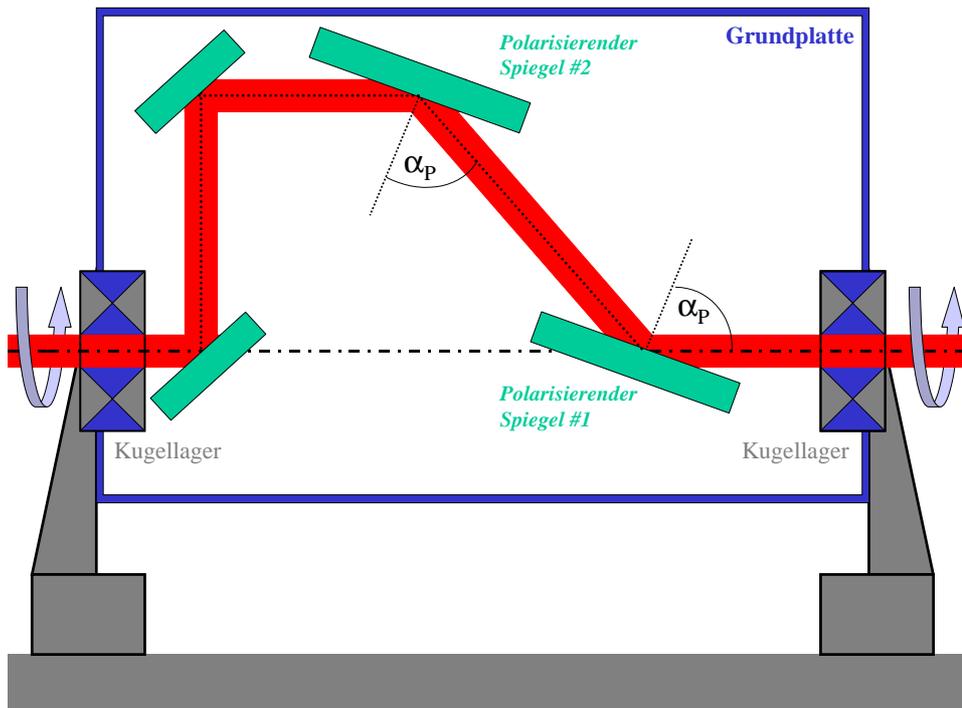
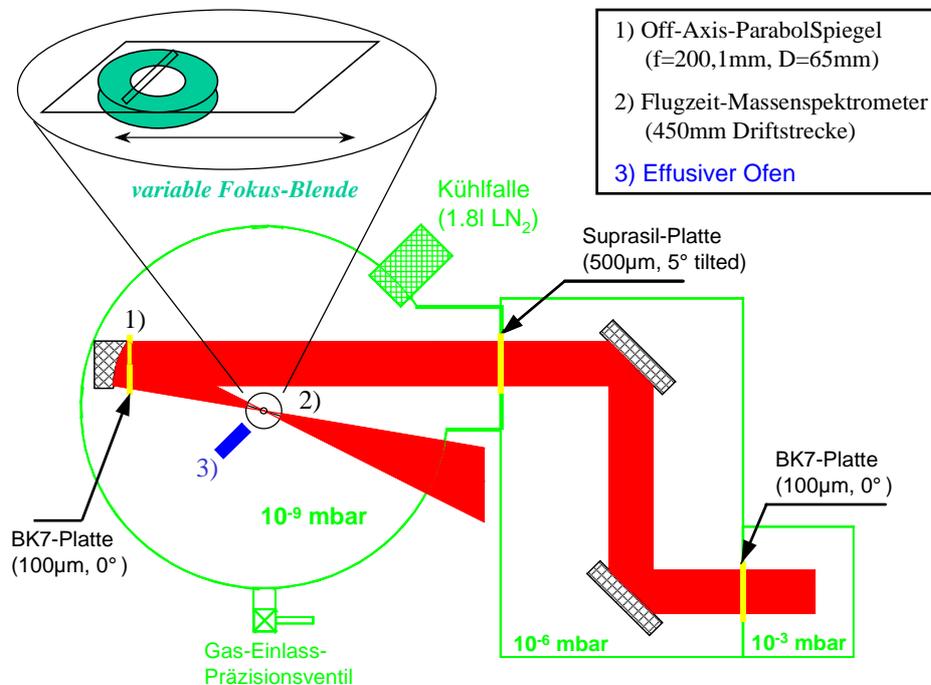


Abbildung 5.2.: Schematische Darstellung des optischen Abschwächers zur kontinuierlichen Variation der Pulsenergie. Kernstück des Aufbaus sind zwei polarisierende Spiegel: Dank einer speziellen dielektrischen Beschichtung wird unter dem Einfallswinkel  $\alpha_p \approx 70^\circ$  nur der senkrecht zur Einfallsebene polarisierte Anteil des linear polarisierten Laserlichts maximal reflektiert. Der Einsatz des zweiten Spiegels dient lediglich zur Verstärkung des Effekts. Bei Rotation der gesamten Anordnung um die Strahlachse kann damit die transmittierte Lichtenergie kontrolliert verändert werden:  $T(0^\circ \dots 90^\circ) = 0.035 \dots 0.877$ .

5.2. Eine UHV-Targetkammer für  $1 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$ Abbildung 5.3.: Prinzip-Skizze der UHV-Targetkammer für  $1 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$ .

Das verzweigte Rohrleitungssystem zur evakuierten Strahlführung des Laserlichts wird bei einem Vakuum-Enddruck im Bereich  $10^{-3} \text{ mbar}$  betrieben, was ausreicht, um den sonst dispersiven Einfluss der Luft auf die fs-Lichtpulse zu unterdrücken. Für die hochauflösenden Messungen zur atomaren Ionisationsdynamik ist dagegen im Fokusvolumen ein Hintergrundsdruck von unter  $10^{-8} \text{ mbar}$  notwendig. Aufgrund des sehr großen Strahldurchmessers der Laserpulse von ca. 60mm ist das erforderliche Druckgefälle zwischen Strahlrohranschluss und Targetkammer nicht durch den Einbau differentieller Pumpstufen erreichbar. Wie aus Abbildung 5.3 zu entnehmen ist, erfolgt in der eingesetzten Messapparatur die Trennung der unterschiedlichen Vakuumbereiche stattdessen mit Hilfe sehr dünner Glas-, bzw. Quarzglas-Fenster. Ihre geringe Dicke ( $100 \mu\text{m}$ , bzw.  $500 \mu\text{m}$ ) gewährleistet eine infolge der Glas-Dispersion nur unwesentliche und daher tolerierbare Verlängerung der Pulsdauer bei Transmission des Laserlichts. Durch den Einbau einer zusätzlichen Verbindungskammer (Vakuum-Enddruck bei  $10^{-6} \text{ mbar}$ ) wird so die UHV-Wechselwirkungskammer durch zwei Trenn-Fenster mit dem Strahlrohr des

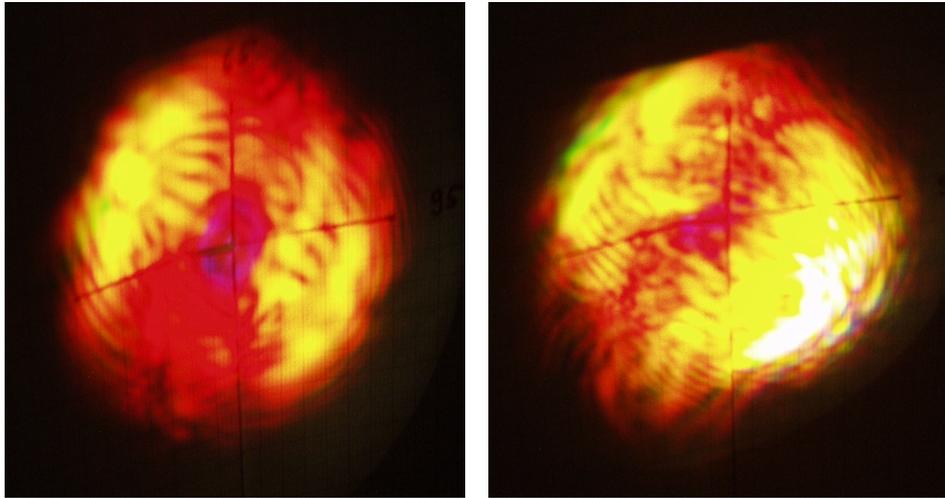


Abbildung 5.4.: Fotografische CCD-Kamerabilder der Projektion der elektrischen Funken-Entladung bei Fokussierung der Laserpulse in Luft. Die Projektionsfläche, ein DIN-A4-Blatt Millimeter-Papier, befindet sich in Strahlrichtung ca. 25cm hinter dem Laserfokus auf der optischen Achse. Die diagonal verlaufende Symmetrieachse in der Farbverteilung ist ein Anzeichen für Astigmatismus im Laserfokus. Ein optimal justierter Lichtfokus weist dagegen eine rotationssymmetrische Färbung auf.  
Linkes Bild:  $E_{\text{Puls}} \approx 5\text{mJ}$ ; rechtes Bild:  $E_{\text{Puls}} \approx 15\text{mJ}$ .

Lasersystems verbunden.

In der Verbindungskammer befinden sich zugleich zwei Umlenkspiegel in z-Anordnung, mit denen die aus dem Strahlrohr einlaufenden fs-Lichtpulse exakt auf den fokussierenden Parabol-Spiegel justiert werden. Dies hat den Vorteil, dass auf eine aufwendige und kostspielige UHV-taugliche Justage-Halterung für den Parabol-Spiegel in der Targetkammer verzichtet werden kann. Zur Erzeugung einer ausreichend kleinen Strahltaile im Zentrum des wiederum aus 3 Feldplatten und einer Mikrokanal-Platte aufgebauten Flugzeit-Massenspektrometers zum Q/M-selektiven Nachweis der im Fokusvolumen produzierten Ionen genügt eine entsprechende Vor-Justage des Parabol-Spiegels per Hand. Dazu werden die ohne Betrieb der letzten Verstärkerstufe erzeugten fs-Lichtpulse des Lasersystems in die unter normalem Luftdruck stehende offene Targetkammer gelenkt. Die wegen des fehlenden letzten Multipass-Verstärkers nun deutlich reduzierte Pulsenergie (maximal 20mJ) reicht trotzdem mehr als aus, um im Bereich der Brennebene des Parabol-Spiegels eine deutlich sichtbare Funken-Entladung zu erzeugen. Mit Hilfe dieses unmittelbar optisch (und auch akustisch!) wahrnehmbaren Effekts kann die korrekte

Position des Parabol-Spiegels in der Targetkammer bestimmt werden. Die Abbildung 5.4 zeigt die mit einer digitalen Fotokamera aufgenommene Projektion der die Luft im Lichtfokus ionisierenden Funken-Entladung auf einem Papierblatt. Neben einer sehr hellen (und lauten) Funken-Entladung im Zentrum der beiden unteren Feldplatten ist ein möglichst symmetrisch gefärbtes Bild des Laserfokus ein untrügliches Anzeichen für einen gut justierten Parabol-Spiegel.

Zur korrekten Bestimmung der in den Experimenten eingesetzten Lichtintensität ist abermals die Vermessung der Pulsdauer des Laserlichts unverzichtbar. Dies erfolgt wie schon in den zurückliegenden Experimenten durch eine untergrundfreie *SHG*-Autokorrelationsmessung der Lichtpulse (vgl. S. 47). Aufgrund der gekapselten Strahlführung sind im Gegensatz zu früher die in den Autokorrelator einzukoppelnden fs-Pulse erst nach dem Passieren der Wechselwirkungszone zugänglich. Zudem besitzen die im Aufbau des Autokorrelators eingesetzten dispersiven Glas-Komponenten keine Entsprechung mehr in optischen Komponenten der aktuellen Strahlführung. Um den nachträglichen Einfluss des Austrittsfensters der Vakuumkammer sowie der Strahlteiler-Platte und der Fokussierlinse im Michelson-Interferometer auf die gemessene Pulsdauer aus den Messwerten herausrechnen zu können, werden zusätzlich dispersive BK7-Planplatten unterschiedlicher Dicke in den Strahlengang des Autokorrelators gestellt. Aus der so erhaltenen Reihe von Pulsdauer-Messwerten lässt sich dann auf die tatsächlich im Laserfokus in der UHV-Targetkammer wirksame Pulsdauer extrapolieren [57].

$$T_{out} = T_{in} \sqrt{1 + \left( \frac{4 \ln(2) gvd D}{T_{in}^2} \right)^2} \quad (5.1)$$

Hierbei bezeichnen  $T_{in}$  und  $T_{out}$  die zeitliche Länge des Lichtpulses vor, bzw. nach Durchlaufen eines Mediums der Dicke  $D$  mit der spezifischen Gruppengeschwindigkeits-Dispersion  $gvd$ . Wie im unteren Teil der Abbildung 5.5 zu sehen, ist die Bestimmung der ursprünglichen Pulsdauer aus einem einzigen Messwert für die Pulsdauer nach Transmission des dispersiven Mediums nicht eindeutig. Die Ergebnisse einer Messreihe erlauben dagegen im Rahmen des Fehlers der Einzelergebnisse die Festlegung auf einen übereinstimmenden Endwert.

Die zur exakten Bestimmung der bei den Messungen erreichten Lichtintensität im Laserfokus notwendige Kenntnis der Größe der Strahlteile der Laserpulse in der Brennebene des Parabol-Spiegels ist für den vorliegenden Intensitätsbereich von  $10^{17} - 10^{19} \text{ W/cm}^2$  nicht mehr durch eine einfache vergrößerte Abbildung der Brennebene auf eine CCD-Kamera zu erlangen. Vor allem die sehr hohen Energiedichten des fokussierten Lichts verhindern eine solche direkte Vermessung des Fokussdurchmessers ohne das Risiko der Zerstörung der abbildenden optischen Komponenten oder des Detektors. Daher muss die im Fokusvolumen erreichte Spitzenintensität auf andere Weise bestimmt werden. Eine vielversprechende Möglichkeit besteht dazu in der Anwendung des aus den Experimenten zur atomaren Ionisationsdynamik erlangten Wissens selbst.

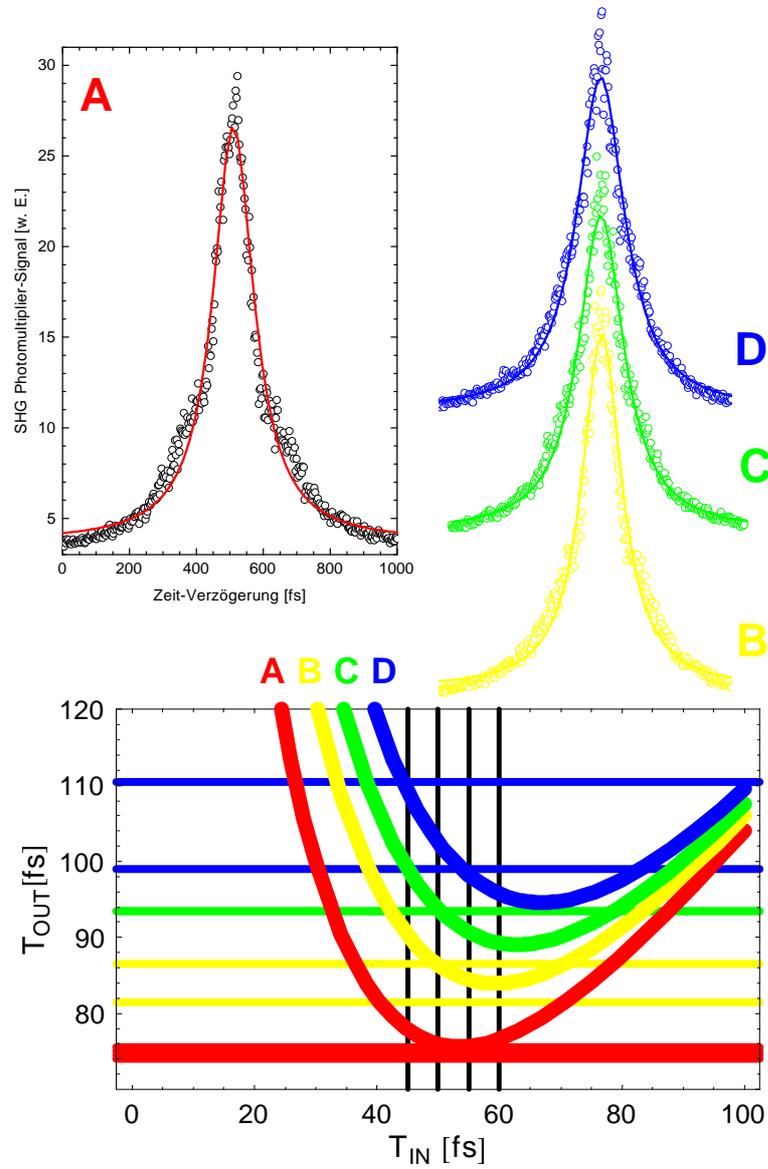


Abbildung 5.5.: SHG-Autokorrelationskurven des zeitlichen Profils der Intensitätsverteilung der Laserpulse des 10TW-Lasersystems. Zur Bestimmung der realen Pulsdauer (A) werden zusätzlich dispersive BK7-Planplatten unterschiedlicher Dicke in den Strahlengang eingesetzt (B: 6.0mm, C: 10.0mm, D: 14.6mm); weitere Ausführungen siehe Text. Bei Annahme eines zeitlich Lorentz-förmigen Intensitätsverlaufs (Faltungsfaktor  $\tau_{ACF}/\tau_{Puls} = 2$ ) bestimmt sich die Pulsdauer damit zu  $\tau_{Puls}(FWHM) = 55 \pm 5$ fs.

Das Flugzeit-Massenspektrometer in der Targetkammer besitzt im Gegensatz zu seinem Vorgängermodell keine simple mittlere Feldplatte aus massivem Edelstahl mit einer zentralen Bohrung zur Extraktion der produzierten Ionen aus dem Wechselwirkungsvolumen heraus. Stattdessen besteht die mittlere Feldplatte aus einem Metallring, der mit einer beweglichen Schlitzblende abgedeckt ist (vgl. Abb. 5.3). Diese über eine Drehdurchführung von außen verstellbare Schlitzblende kann entlang der optischen Achse der fokussierten Lichtpulse verschoben werden. In der Regel dient dies der nachträglichen Korrektur der Lage des Detektionsvolumens des Q/M-Spektrometers in Bezug auf das tatsächliche Fokuszentrum der fs-Laserpulse. Die Justage der exakten Strahlage auf dem Parabol-Spiegel mittels der beiden Umlenkspiegel aus der Verbindungskammer ermöglicht keine Variation der Brennebene entlang der Strahlachse; bei der Vor-Justage des Parabol-Spiegels per Hand kann die Lage des Fokuszentrums aber nur bis auf 1-2mm genau auf die Mittelachse der Feldplatten-Anordnung eingestellt werden. Andererseits besteht mit dieser variablen Fokusblende (Schlitzbreite 1.5mm, Schlitzlänge 20mm) die Möglichkeit, die räumliche Verteilung der verschiedenen Ladungszustände im Fokuszvolumen zu untersuchen, was nebenbei auch Aussagen über die Qualität des Laserfokus gestattet. Die Abbildung 5.6 zeigt das Ergebnis einer solchen Vermessung des zentralen Wechselwirkungsvolumens. Die für eine Abfolge von Positionen der Fokusblende registrierten Flugzeit-Spektren der Ionensignale werden nebeneinander aufgetragen und ergeben so ein zweidimensionales Bild des Laserfokus. Bereits auf den ersten Blick ist eine sehr hohe Symmetrie der gemessenen Verteilung in Bezug auf das Fokuszentrum (bei ca. 2.4mm Schlitzposition) zu erkennen. Dies lässt auf einen gut justierten, astigmatismusfreien Lichtfokus schließen. Die beobachtete räumliche Verteilung der verschiedenen Ladungszustände ergibt zudem eine schalenförmige Struktur, in der die am höchsten geladenen Zustände auf das Zentrum konzentriert sind, während sich das Signalmaximum der niedergeladenen Ionen in Abhängigkeit von der Ionisationsstufe immer weiter nach aussen verlagert. Dieses Verhalten entspricht recht gut den theoretischen Vorhersagen aufgrund der erwarteten räumlichen Intensitätsverteilung im Gaußschen Laserstrahl-Fokus (vgl. Abb. 2.3).

Alle Anzeichen aus den bislang rein qualitativen Untersuchungen des Laserfokus sprechen für einen gut justierten, räumlich Gauß-förmigen Strahlfokus der fs-Lichtpulse, so dass die vorliegende Messapparatur es gestatten wird, Experimente zur Ionisationsdynamik an bislang unzugänglichen atomaren, bzw. ionischen Systemen im Intensitätsbereich deutlich oberhalb von  $1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  durchzuführen.

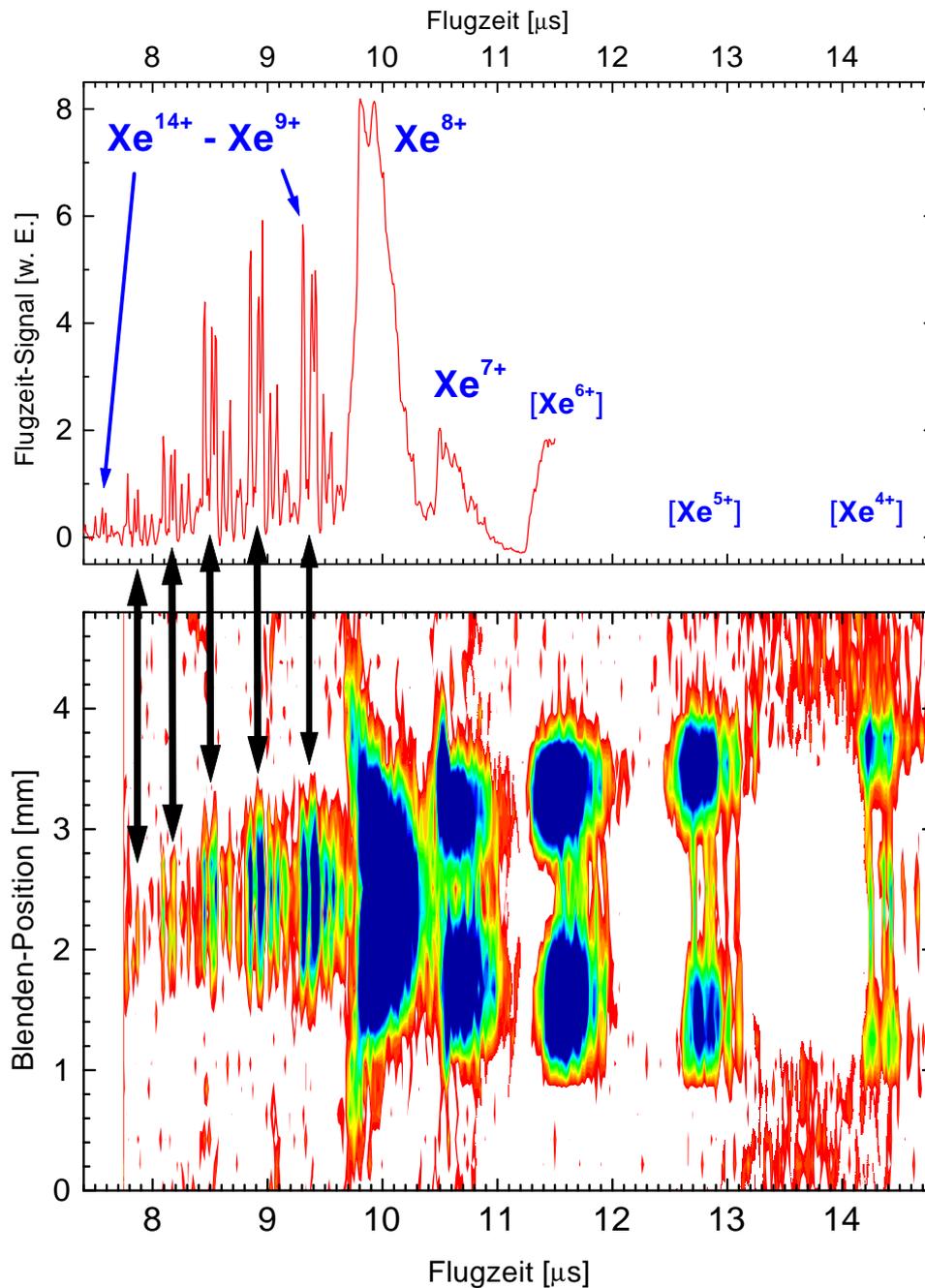


Abbildung 5.6.: Untersuchung der räumlichen Verteilung der verschiedenen Ladungszustände im Laserfokus. Das Flugzeit-Spektrum wird für verschiedene Positionen der Schlitzblende (Breite 1.5mm) entlang der optischen Achse aufgenommen (Diskussion siehe Text). Das Xe<sup>8+</sup>-Ionensignal wird von O<sup>+</sup> überlagert.

### 5.3. Messungen an Edelgasen: Xenon-VIII und heliumartiges Neon-VI

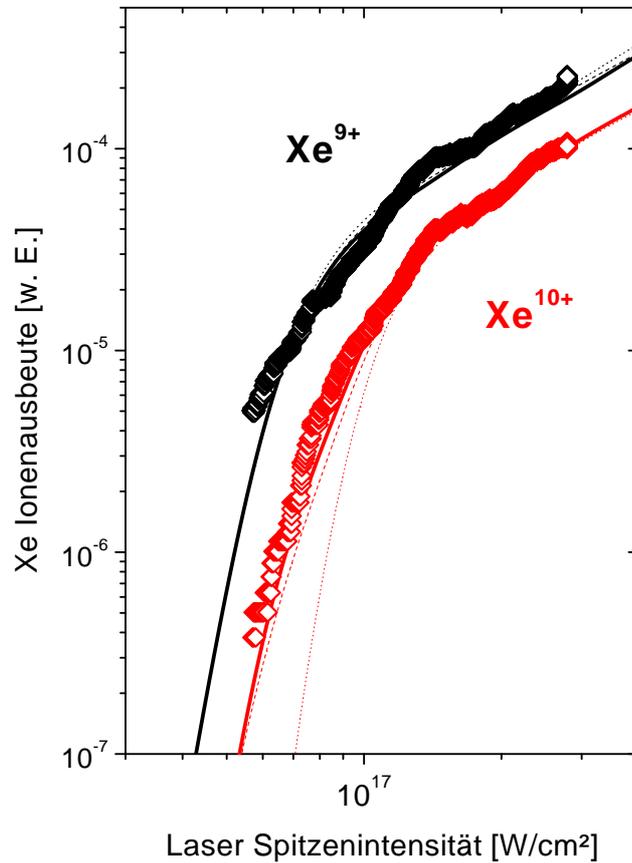


Abbildung 5.7.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Xe-VIII im Vergleich zu Modellrechnungen nach ADK (gepunktete Linien) sowie mit der empirischen Formel unmittelbar (ausgezogene Linien) und im Rahmen des *Shake*-Modells (gestrichelte Linien). Jeder Messpunkt entspricht dem gemittelten Signal von 500 Lichtpulsen.

Auch wenn bei der Untersuchung des Fokusvolumens in der neu konzipierten Targetkammer bereits nachweislich die Ionisation von Xe<sup>14+</sup> beobachtet werden konnte, so ist die absolute Signalhöhe doch eindeutig zu gering, um direkt Messungen zur atomaren Ionisationsdynamik an den allerhöchsten Ladungszuständen von Xenon durchführen zu können. Für Messungen der Ionenausbeuten kommen nur Ionisationsstufen in Frage, deren Signal eine Beobachtung des intensitätsabhängigen Verhaltens über minde-

## 5. Experimente bei höchsten Intensitäten

---

stens 2 Größenordnungen gestattet. Im Falle des Edelgases Xenon bietet sich etwa Xenon<sup>8+</sup> (Xe-VIII) als ionischer Ausgangszustand für Experimente im Intensitätsbereich um  $1 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$  an.

<b>Xe-VIII</b>	Konfiguration:	[Kr]		4d <sup>10</sup>
	$E_{\text{ion}}$ [eV]:	...	...	233, 202, 171
	$I_{\text{Sätt}}$ [W/cm <sup>2</sup> ):	...	...	$9.7 \cdot 10^{16}$ , $6.7 \cdot 10^{16}$ , $4.2 \cdot 10^{16}$

Die Sättigungsintensität von Xe<sup>8+</sup> beträgt  $7.9 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  und kann daher in entsprechend großer Anzahl im Laserfokus produziert werden. Zur Erzeugung von Xe-VIII wird das letzte im 5s-Orbital verbliebene Elektron freigesetzt ( $E_{\text{ion}} = 105.9 \text{ eV}$ ), womit die äußere Elektronen-Schale (Hauptquantenzahl  $n = 5$ ) vollständig entleert ist. Die nachfolgenden Ionisationsstufen bedingen also ein Auslösen von Elektronen aus dem bis dahin abgeschlossenen 4d<sup>10</sup>-Orbital, was mit einer signifikanten Erhöhung der Ionisationsschwelle für das insgesamt 9. Elektron verbunden ist. Die Untersuchung des Ionisationsverhaltens von Xe<sup>9+</sup> und Xe<sup>10+</sup> bedeutet zugleich die Vermessung eines atomaren, bzw. ionischen Systems, in dem erstmals d-Elektronen (Drehimpuls-Quantenzahl  $l = 2$ ) beteiligt sind.

Die in Abbildung 5.7 dargestellten intensitätsabhängigen Ionenausbeuten von Xe<sup>9+</sup> u. Xe<sup>10</sup> zeigen bereits auf den ersten Blick das erwartete typische Verhalten. Infolge der deutlichen Zunahme der Bindungsenergie beim Sprung auf die nächste l-Unterschale befinden sich die Ionenausbeuten der ersten 8 Ladungszustände bereits in der Volumensättigung und im Fokusvolumen steht praktisch nur Xe<sup>8+</sup> als Ausgangszustand für die höheren Ionisationsstufen zur Verfügung. Daher kann Xe<sup>9+</sup> nur durch sequentielle Ionisation entstehen, was durch die Übereinstimmung seines gemessenen Ionisationsverhaltens mit den theoretischen Vorhersagen nach dem ADK-Modell bestätigt wird. Die Produktion von Xe<sup>10+</sup> dagegen weist deutlich sichtbar einen nicht-sequentuellen Beitrag auf, der bei  $7 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  eine Überhöhung der tatsächlichen Ionenausbeute um den Faktor 20 gegenüber den Prognosen aus rein sequentieller Ionisation bewirkt. Oberhalb von  $1 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$  befinden sich schließlich beide Ladungszustände in Sättigung, entsprechend verlaufen die Messkurven bei höheren Intensitäten im Einklang mit den theoretischen Kurven  $\propto I^{3/2}$ . Das Ausmaß der simultanen Doppelionisation von Xe<sup>8+</sup> wird durch die Modellrechnungen mit der empirischen Formel recht gut nachempfunden. Für den vorliegenden Fall liefert die unterschiedliche Verwendung der empirischen Formel praktisch übereinstimmende theoretischen Kurven.

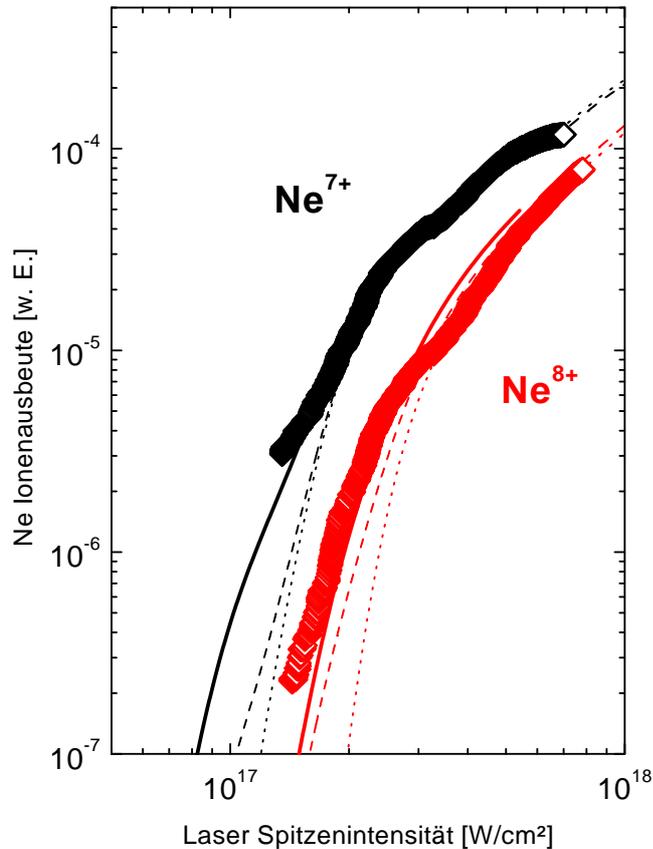


Abbildung 5.8.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von heliumartigem Ne-VI im Vergleich zu Modellrechnungen nach ADK (gepunktete Linien) sowie mit der empirischen Formel unmittelbar (ausgezogene Linien) und im Rahmen des *Shake*-Modells (gestrichelte Linien,  $I_{\text{Ref}} = 0.7 I_{\text{Sätt}}$ ). Jeder Messpunkt entspricht dem gemittelten Signal von 500 Lichtpulsen.

Wie schon in den früheren Experimenten gilt ein besonderes Interesse jenen atomaren Systemen, deren elektronische Konfiguration eine mit Helium vergleichbare Struktur besitzt. Im nun neu erschlossenen Intensitätsbereich bis  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> bilden verschiedene ionischen Zustände der Edelgase helium-ähnliche Systeme. Ein erster Kandidat ist Neon<sup>6+</sup> (Ne-VI), dessen Sättigungsintensität bei  $6.9 \cdot 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> liegt und daher im Laserfokus in ausreichender Anzahl produziert wird ( $E_{\text{ion}} = 157.17$  eV). Ne-VI markiert zugleich den Sprung von dem zu seiner eigenen Produktion entleerten  $2p^6$ -Orbital auf die  $2s^2$ -Unterschale, einem heliumartigen 2-Elektronen-System. Unterhalb des  $2s^2$ -Orbitals liegt nur noch die ausserordentlich stark gebundene  $1s^2$ -Schale, die erst mit Lichtinten-

## 5. Experimente bei höchsten Intensitäten

---

sitäten weit oberhalb von  $1 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$  wechselwirkt. Daher stellt  $\text{Ne}^{6+}$  ein fast ideales unabhängiges Modell-System für eine heliumartige Elektronenkonfiguration dar.

<b>Ne-VI</b>	Konfiguration:	$1s^2$	$2s^2$
	$E_{\text{ion}}[\text{eV}]$ :	1362.21, 1195.9	239.09, 207.3
	$I_{\text{Sätt}}[\text{W/cm}^2]$ :	$1.4 \cdot 10^{20}$ , $1.0 \cdot 10^{20}$	$2.0 \cdot 10^{17}$ , $1.5 \cdot 10^{17}$

Das in den Messungen beobachtete intensitätsabhängige Verhalten der Ionenausbeuten von  $\text{Ne}^{7+}$  u.  $\text{Ne}^{8+}$  zeigt die Abbildung 5.8. Trotz des deutlichen Abstandes der Bindungsenergien der 6. und 7. Ionisationsstufe ist unterhalb von  $1.3 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$  in der  $\text{Ne}^{7+}$ -Messkurve eine Abweichung vom an sich erwarteten rein sequentiellen Verlauf sichtbar. Dagegen entspricht die gemessene nicht-sequentielle Überhöhung der  $\text{Ne}^{8+}$ -Ausbeute den Erwartungen (Faktor 20 bei  $2.0 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$ ). Bei einem Verhältnis der Ein-Elektronen-Potentiale von etwa 7:8 ergibt sich im vorliegenden Fall für das Verhältnis von Doppel- zu Einfach-Ionisation  $\text{Ne}^{8+}/\text{Ne}^{7+} \approx 0.12$ . Oberhalb von ca.  $2.3 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$  gerät die  $\text{Ne}^{7+}$ -Ionenausbeute endgültig in den Bereich der Volumensättigung, weshalb auch die  $\text{Ne}^{8+}$ -Messkurve folgerichtig auf einen rein sequentiellen Verlauf einschwenkt. Die unter Anwendung der empirischen Formel berechneten theoretischen Kurven sind ein weiteres Mal in der Lage, die im Experiment registrierten Messdaten in guter Übereinstimmung nachzumodellieren. Auch die nicht-sequentielle Abweichung der  $\text{Ne}^{7+}$ -Messwerte unterhalb von  $1.3 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$  wird durch die Modellrechnungen mit der empirischen Formel korrekt wiedergegeben. Allerdings gilt dies nicht für die Rechnungen nach dem *Shake*-Modell mit der empirischen Formel. Ursache dafür ist der für die vorliegende Situation anscheinend falsche Wert der Referenz-Intensität  $I_{\text{Ref}} = 0.7 I_{\text{Sätt}}$  zur Berechnung der *Shake*-Faktoren der nicht-sequentiellen Beiträge. Diese im Falle von  $\text{Ne}^{2+}$  so erfolgreiche Wahl (vgl. Abb. 3.12) wurde konsequenterweise auch für die hier gezeigte Modellierung der höheren Ladungszustände von Neon verwendet; erst eine Referenz-Intensität  $I_{\text{Ref}} = 1.0 I_{\text{Sätt}}$  liefert praktische gleiche Vorhersagen wie die direkte Anwendung der empirischen Formel. Eine sinnvolle Begründung für die offenbar notwendige Variation des Referenzwertes ist bislang nicht einsichtig. Dies offenbart noch einmal den eindeutig experimentellen Charakter der Verbindung des *Shake*-Modells mit der empirischen Formel, die aufgrund des Fehlens einer übergeordneten theoretischen Beschreibung der Ionisationsmechanismen auf die von Fall zu Fall unterschiedliche Wahl der geeigneten Referenz-Intensität angewiesen ist, um allein aus der dann gegebenen guten Übereinstimmung mit den Messergebnissen ihre Anwendung zu rechtfertigen.

Obwohl es in dem vorliegenden Intensitätsbereich bei  $10^{17} \text{ W/cm}^2$  noch eine Reihe anderer für die Ionisationsdynamik interessante Elektronen-Konfigurationen in den ionischen Zuständen der Edelgase gibt, soll zum Abschluss der im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten integralen, intensitätsvariierenden Messungen zur atomaren Ionisationsdynamik mit höchstintensiven fs-Lichtpulsen auf die Ergebnisse der Untersuchungen an einem wirklich ideal heliumartigen 2-Elektronen-System eingegangen werden.

## 5.4. Experimente an Metaldämpfen: Heliumartiges Lithium-I

Bei der Suche nach weiteren mit Helium vergleichbaren Modell-Systemen für Untersuchungen der atomaren Ionisationsdynamik besitzen selbstverständlich die Elemente der zu Helium isoelektronischen Serie ( $\text{He}$ ,  $\text{Li}^+$ ,  $\text{Be}^{2+}$ ,  $\text{B}^{3+}$  ...) eine besondere Attraktivität. Nachdem mit den fs-Lichtpulsen des 25TW-Lasersystems in der neuen Targetkammer der Intensitätsbereich bis knapp unter  $1 \cdot 10^{18} \text{W}/\text{cm}^2$  für intensitätsvariierende Messungen erschlossen worden ist, steht der Vermessung des intensitätsabhängigen Ionisationsverhaltens von Lithium<sup>+</sup> ( $\text{Li-I}$ ) nichts mehr im Wege.

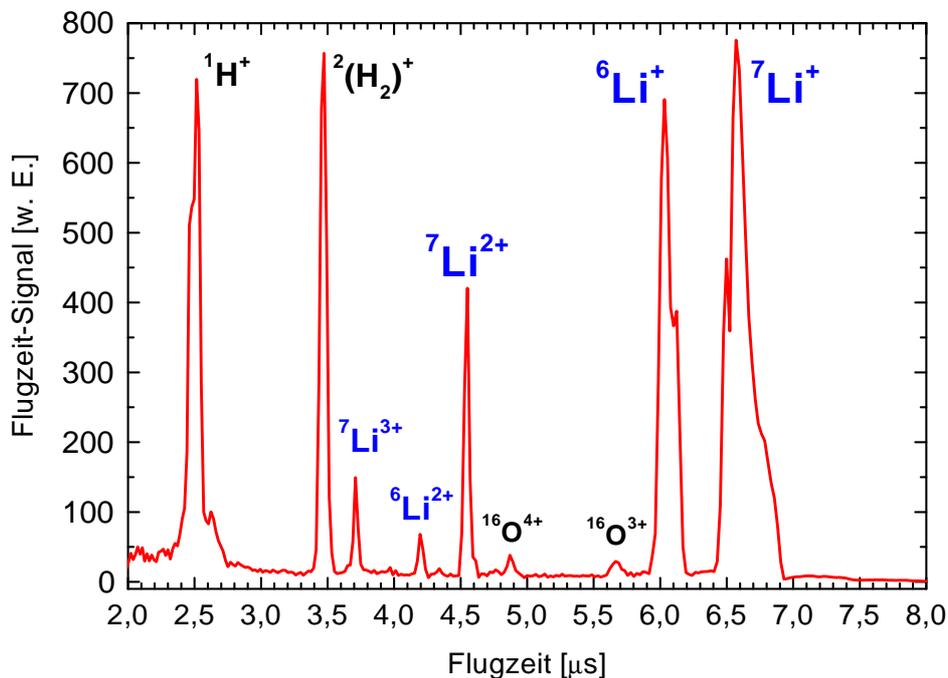


Abbildung 5.9.: Flugzeit-Spektrum von Lithium-Metaldampf. Die  $\text{Li}^+$ -Signale sättigen bereits den Ionen-Detektor (*Micro-Channel-Plate*).

Li-Ofenstrom 30A, Kammerdruck:  $P_{\text{Ofen}} = 2.0 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$ .

Zur Bereitstellung eines Ensembles von neutralen Li-Atomen im Fokusvolumen der Laserpulse wird ein mit Li-Metall gefülltes Edelstahlröhrchen elektrisch aufgeheizt. Durch eine seitliche Bohrung ( $\varnothing 0.5 \text{ mm}$ ) in dem an beiden Enden in Kupfer-Elektroden leitend eingespannten Ofen-Röhrchens und eine vorgesetzte Lochblende ( $\varnothing 2 \text{ mm}$ ) in ca. 10mm Abstand wird ein Strahl aus verdampften Li-Atomen erzeugt (Öffnungswinkel

des Li-Atom-Dampfstrahls ca.  $6^\circ$ ), der auf das etwa 30mm entfernte Wechselwirkungsvolumen im Lichtfokus zwischen den beiden unteren Feldplatten im Detektionszentrum des Flugzeit-Massenspektrometers gerichtet ist. Die Abbildung 5.9 zeigt ein typisches Flugzeit-Spektrum des mit dieser Ofenkonstruktion produzierten Li-Metalldampfes. Da im übrigen für Flugzeiten länger als  $8\mu\text{s}$  kein Signal registriert wird, das von molekularem  $\text{Li}_2^+$  stammen würde, kann davon ausgegangen werden, dass nur atomares Lithium im Wechselwirkungsvolumen vor der Ankunft des ionisierenden fs-Lichtpulses vorkommt.

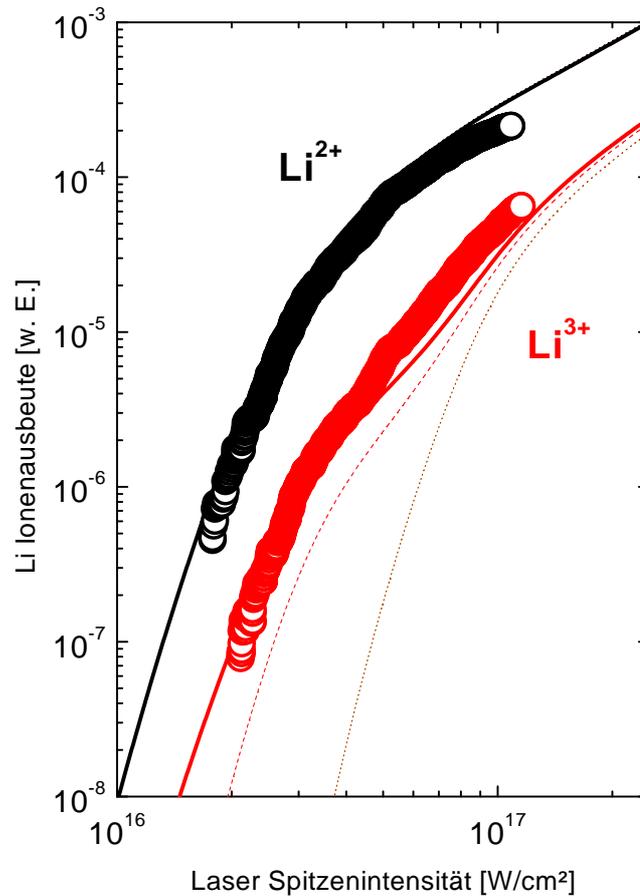


Abbildung 5.10.: Intensitätsabhängige Ionenausbeuten von Lithium<sup>+</sup> im Vergleich zu Modellrechnungen nach ADK (gepunktete Linie), der empirischen Formel (gestrichelte Linie) und dem *Shake*-Modell mit der empirischen Formel (ausgezogene Linien,  $I_{\text{Ref}} = 1.0 I_{\text{Sätt}}$ ). Jeder Messpunkt entspricht dem gemittelten Signal von 500 Lichtpulsen.

Die Struktur des neutralen 3-Elektronen-Systems von Lithium ist mit dem Verhältnis der drei Valenzelektronen im neutralen Indium vergleichbar.

<b>Lithium</b>	Konfiguration:	$1s^2$	$2s$
	$E_{\text{ion}}[\text{eV}]$ :	122.455, 75.641	5.392
	$I_{\text{Sätt}}[\text{W}/\text{cm}^2]$ :	$1.0 \cdot 10^{17}$ , $3.3 \cdot 10^{16}$	$3.4 \cdot 10^{12}$

Wegen der ebenfalls sehr geringen Bindungsenergie des äußeren 2s-Elektrons im Lithium besitzt  $\text{Li}^+$  eine so niedrige Sättigungsintensität, dass nur noch Li-I im zentralen Fokussvolumen vorhanden ist, wenn das innere  $1s^2$ -Orbital in Wechselwirkung mit dem äußeren Lichtfeld tritt.  $\text{Li}^{2+}$  kann also wie  $\text{He}^+$  ausschließlich durch sequentielle Ionisation im Laserfokus gebildet werden.  $\text{Li}^{3+}$  besteht schließlich nur noch aus dem reinen Atomkern, was der Situation in  $\text{He}^{2+}$  genau entspricht.

Das Ergebnis der Untersuchungen des Ionisationsverhaltens von Lithium-I zeigen die in Abbildung 5.10 dargestellten Messkurven. Wie erwartet lässt sich eine deutliche Überhöhung der Ionenausbeute von  $\text{Li}^{3+}$  gegenüber den theoretischen Kurven aus der rein sequentiellen ADK-Theorie ablesen. Sie erreicht ca. 2.5 Größenordnungen bei  $3.5 \cdot 10^{17} \text{ W}/\text{cm}^2$  und ist damit der nach Helium (max. 6 Größenordnungen bei  $1 \cdot 10^{15} \text{ W}/\text{cm}^2$ , vgl. Abb.2.4) zweitstärkste in Experimenten nachgewiesene Beitrag von simultaner Doppelionisation bei einer heliumartigen Elektronenkonfiguration. Bei einer signifikant höheren totalen Bindungsenergie ( $\text{He } 79\text{eV} \leftrightarrow \text{Li}^+ 198\text{eV}$ ) sowie einem anderen Teiler-Verhältnis der Ein-Elektronen-Potentiale ( $\text{He } 1:2 \leftrightarrow \text{Li}^+ 3:5$ ) ergibt sich im Fall von  $\text{Lithium}^+$  ein Verhältnis von Doppel- zu Einfach-Ionisation von  $\text{Li}^{3+}/\text{Li}^{2+} \approx 0.08$ , das wie schon bei  $\text{Indium}^+$  und  $\text{Neon}^{6+}$  größer ausfällt als in Helium.

Die Qualität der theoretischen Kurven unter Anwendung der empirischen Formel zur Modellierung der nicht-sequentiellen Anteile an den Ionisationsprozessen weist das gleiche charakteristische Bild wie die entsprechenden  $\text{He}^{2+}$ -Kalkulationen auf. Die Vorhersagen aus den Rechnungen, in denen die simultanen Ionisationsraten nach der empirischen Formel unmittelbar zeitabhängig für jeden Intensitätswert in direkter Konkurrenz zu den sequentiellen Raten berechnet werden, unterschätzen die gemessene  $\text{Li}^{3+}$ -Ausbeute systematisch um mindestens einen Faktor 2. Erst die Verwendung der empirischen Formel im Rahmen des *Shake*-Modells, wobei das Verhältnis von sequentieller und nicht-sequentieller Ionisationswahrscheinlichkeit als konstant angenommen wird und der Proportionalitätsfaktor einmalig mit Hilfe der empirischen Formel bei einer spezifischen Referenzintensität ermittelt wird, liefert eine zufriedenstellende Übereinstimmung der theoretischen Vorhersagen mit den Messkurven.

Nachdem die neu konzipierte Targetkammer sich im Rahmen der bislang vorgestellten intensitätsvariierenden Messungen bis nahe  $1 \cdot 10^{18} \text{ W}/\text{cm}^2$  bewährt hat, steht zur vollständigen Charakterisierung der Messanordnung noch die Bestimmung der maximal erreichbaren Spitzenintensität aus.

## 5.5. Ionisationsdynamik als Messtechnik: Direkte Bestimmung der Fokusintensität

Zur endgültigen quantitativen Bestimmung der mit der vorliegenden Messapparatur erreichbaren Spitzenintensität im Wechselwirkungsvolumen wird nun in Umkehrung der bisherigen Praxis die gemessene Teilchenanzahl der verschiedenen im Laserfokus produzierten Ionenausbeuten verwendet, um im Vergleich mit den theoretischen Vorhersagen eine Aussage über die im Fokusvolumen erzielte Spitzenintensität zu bekommen. Bei bekannter Pulsenergie und Pulsdauer des Laserlichts lässt sich damit auch auf die Größe der Strahltaile schließen. Die Abbildung 5.11 zeigt das Flugzeit-Spektrum von Xenon-Gas, wie es bei maximaler Pulsenergie des Laserlichts registriert wird. Zur Aufnahme der Ionensignale wird diesmal ein sog. TDC (*time-to-digital-converter*) verwendet; das Eintreffen des fs-Lichtpulses in der UHV-Targetkammer generiert ein Startsignal für die interne Uhr des TDC, die durch den Signalpuls vom Detektor beim Auftreffen eines Ions wieder gestoppt wird. Die Vielzahl der auf diese Weise gemessenen Flugzeiten der Ionen ergibt bei statistischer Auftragung in einem Histogramm das korrekt gewichtete Flugzeit-Q/M-Spektrum der im Fokusvolumen produzierten Ladungszustände. Wie die Ausschnittsvergrößerung im unteren Teil der Abbildung 5.11 zeigt, wird  $\text{Xe}^{20+}$  als höchste sicher detektierte Ionisationsstufe registriert. Die Messwerte für Flugzeiten um  $5,9\mu\text{s}$  deuten zwar bereits auch die Existenz von  $\text{Xe}^{21+}$  als allerhöchsten Ladungszustand im Laserfokus an, das Signal liegt aber nur sehr knapp oberhalb der Nachweisgrenze.

Zur Bestimmung der Lichtintensität aus dem Flugzeit-Spektrum werden nun die Signale der einzelnen Ladungszustände aufintegriert und in Abhängigkeit von der Ionisationsstufe aufgetragen. Durch Vergleich mit den aus entsprechenden Modellrechnungen nach ADK und mit der empirischen Formel resultierenden theoretischen Kurven lässt sich so aus den Signalverhältnissen der Ladungszustände untereinander die zur Erzeugung einer solchen relativen Teilchenanzahl notwendige Lichtintensität auf einen sehr eng begrenzten Werte-Bereich einschränken. Da die Nachweisempfindlichkeit des zur Detektion der Ionensignale verwendeten *Multi-Channel-Plates (MCP)* über das gesamte Spektrum von  $\text{Xe}^+$  bis  $\text{Xe}^{21}$  in nicht genau bekanntem Maße stark variiert, kann eine derartige Auswertung nur auf einen eng begrenzten Ausschnitt von aufeinanderfolgenden Ladungszuständen im Flugzeit-Spektrum angewendet werden, um den Einfluss der MCP-Nachweischarakteristik auf das Ergebnis zu minimieren. Für den vorliegenden Fall sind die auf den Signalwert von  $\text{Xe}^{14+}$  normierten relativen Teilchenzahlen der Ladungszustände von  $\text{Xe}^{14+}$  bis  $\text{Xe}^{21+}$  in Abbildung 5.12 dargestellt.

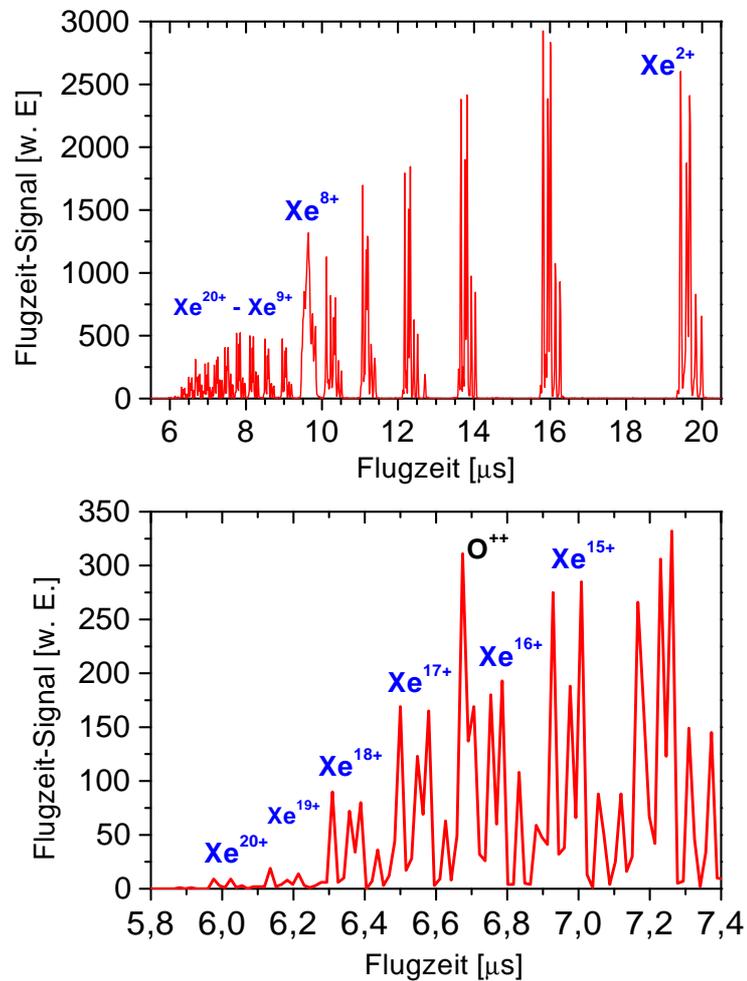


Abbildung 5.11.: Flugzeit-Spektrum von Xenon-Gas (Summensignal von 1024 Lichtpulsen). Deutlich sichtbar ist die Strukturierung der einzelnen Ionensignale aufgrund der natürlichen Isotopenverteilung von Xenon (vgl. Abb. 4.5). Obere Darstellung: Gesamtes Massenspektrum ab  $\text{Xe}^{2+}$ ; untere Darstellung: Ausschnittsvergrößerung der höchsten Ladungszustände mit dem Nachweis von  $\text{Xe}^{20+}$  (Gasdruck:  $P_{\text{Xe}} = 7 \cdot 10^{-8}$  mbar, Hintergrundsdruck:  $P_0 = 9.5 \cdot 10^{-9}$  mbar).

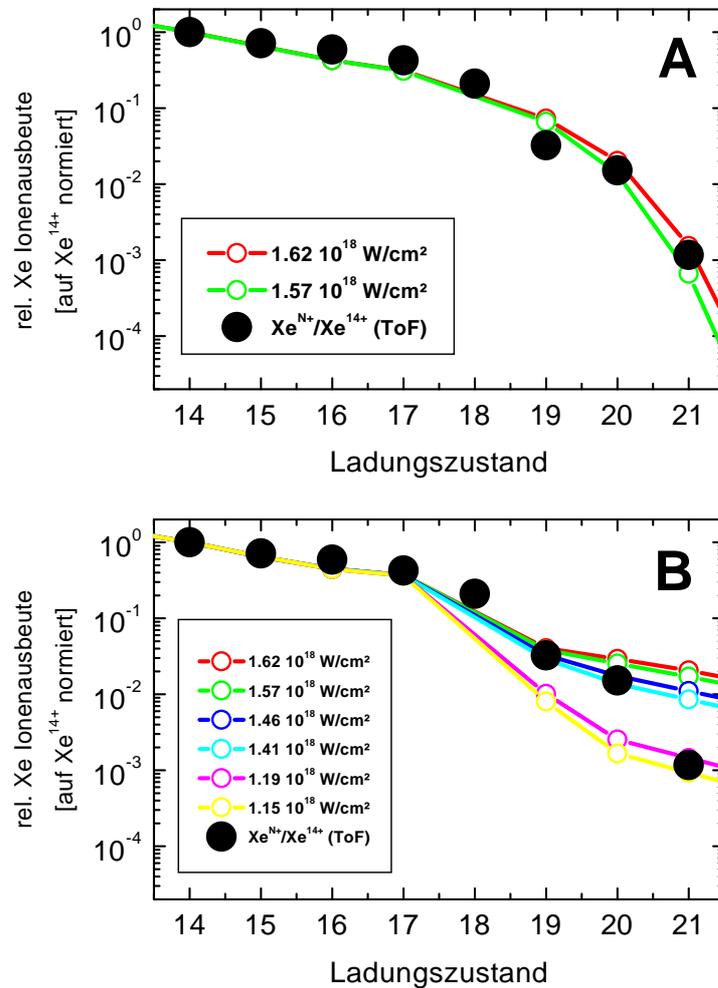


Abbildung 5.12.: Bestimmung der Spitzenintensität im Laserfokus aus dem Verhältnis der Teilchenanzahl der verschiedenen Ladungszustände. Die absoluten Teilchenzahlen wurden durch Integration der gemessenen Flugzeit-Signale aus Abb. 5.11 ermittelt. Die theoretischen Kurven stammen aus Modellrechnungen nach ADK (A) und mit der empirischen Formel (B).

Diese Methode der Intensitätsbestimmung ist zudem wesentlich genauer als die Berechnung der Lichtintensität aus den Ergebnissen der unabhängigen Einzelmessungen von Pulsdauer, Pulsenergie und (wenn möglich) Fokusbereich der fs-Lichtpulse. Die Genauigkeit des Verfahrens kann durch die richtige Wahl des zu ionisierenden Elements individuell auf den erwarteten Intensitätsbereich optimal abgestimmt werden. Selbst bei einer Beschränkung der Atomsorten auf die im Experiment leicht handhabbaren Edelgas-Elemente ergibt sich aus dem gestaffelten Verlauf der Sättigungsintensitäten der verschiedenen Ionisationsstufen aufgrund der elektronischen nI-Schalenstruktur gemäß Abbildung 3.10 auf S.39 ein prinzipiell nutzbarer Intensitätsbereich von  $10^{16} - 10^{19} \text{ W/cm}^2$ . Verwendet man jeweils das Gas, dessen Ionisationspotentiale beim erwarteten Intensitätswert am dichtesten aufeinanderfolgen, so sollte der Fehler bei dieser Art der Intensitätsbestimmung über den gesamten Intensitätsbereich nie mehr als  $\pm 10\%$  betragen; der aus drei Einzelmessungen zusammengesetzte Messfehler des herkömmlichen Verfahrens lässt sich dagegen nur mit sehr hohem Aufwand auf unter  $\pm 20\%$  bringen.

Intensitätsbereich [ $\text{W/cm}^2$ ]	Edelgas
$1 \dots 4 \times 10^{18}$	Xenon
$4 \dots 7 \times 10^{18}$	Krypton
$7 \dots 10 \times 10^{18}$	Argon

Die Unsicherheit des so erhaltenen Intensitätswertes ist darüber hinaus einerseits durch den statistischen Fehler der registrierten Häufigkeiten der verschiedenen Ladungszustände zur Ermittlung der relativen Teilchenanzahl aus den gemessenen Flugzeit-Signalen gegeben. Die Verwendung eines aus entsprechend vielen Laserpulsen gemittelten Flugzeit-Spektrums eliminiert diese Fehlerquelle hinreichend. Damit ist zudem sichergestellt, dass bei gleicher Nachweiswahrscheinlichkeit für alle zur Intensitätsbestimmung berücksichtigten Ionisationsstufen der Messfehler unabhängig von der absoluten Signalgröße der jeweiligen Ionisationsstufe ist; d. h. die hohen Ladungszustände, deren Signalwerte nur knapp oberhalb der Nachweisgrenze liegen, besitzen denselben geringen statistischen Fehler wie alle anderen niederen Ladungszustände mit deutlich ausgeprägten Signalpegeln. Andererseits ist die Verlässlichkeit dieses Verfahrens stark abhängig von der Qualität der zur Eingrenzung des Intensitätsbereichs notwendigen theoretischen Kurven. Hierbei kommt, wie sich gleich zeigen wird, abermals der richtigen Wahl des den Berechnungen zugrundeliegenden physikalischen Modells eine entscheidende Bedeutung zu.

Berücksichtigt man wie in Abbildung 5.12A nur sequentielle Mehrfach-Ionisation gemäß ADK-Theorie, so markieren alle Ladungszustände übereinstimmend denselben Intensitätsbereich von  $1.6 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$ . Auch die Signalwerte der bei dieser Intensität noch ungesättigten Ionisationsstufen  $\text{Xe}^{20+}$  u.  $\text{Xe}^{21+}$  lassen sich gut mit den Modellrechnungen nach ADK auf diese Spitzenintensität eingrenzen. Werden dagegen die Flugzeit-Messwerte wie in Abbildung 5.12B mit Modellrechnungen mit der empirischen Formel

verglichen, so lässt sich daraus kein von allen Ionisationsstufen gleichermaßen favorisierter Intensitätsbereich ablesen. Während die bereits in Volumensättigung stagnierenden, niedergeladenen Ionisationsstufen wiederum einen Intensitätsbereich bis  $1.6 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$  nahelegen, weichen die Messsignale von  $\text{Xe}^{20+}$  und vor allem von  $\text{Xe}^{21+}$  auf theoretische Kurven mit geringerer Spitzenintensität aus. Dieses Verhalten erstaunt, stellt es doch offenbar eine Umkehrung des Phänomens der simultanen Mehrfach-Ionisation dar, die sich bislang immer als eine deutliche Überhöhung der gemessenen Ionenausbeuten gegenüber den rein sequentiellen Vorhersagen bemerkbar gemacht hat. Insofern wäre zu erwarten gewesen, dass nur die Modellrechnungen mit der empirischen Formel die Festlegung auf einen von allen Messdaten gleichermaßen favorisierten Intensitätsbereich gestatten, während im Vergleich zu den rein sequentiellen Kurven nach der ADK-Theorie die Signalwerte der noch ungesättigten Ladungszustände infolge nicht-sequentieller Beiträge am Ionisationsprozess oberhalb des von den gesättigten, niedergeladenen Ionisationsstufen markierten Intensitätsbereichs auf zu hoch kalkulierten Spitzenintensitäten liegen. In der nun vorliegenden Situation lassen die Messdaten zur Erklärung dieses experimentell beobachteten Verhaltens nur den einen Schluss zu: Bei Lichtintensitäten oberhalb von  $1 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$  nimmt der Einfluss simultaner Mehrelektronenionisation stark ab, weshalb die gemessenen Teilchenanzahlen der gesättigten wie ungesättigten Ionisationsstufen sich eindeutig besser mit den theoretischen Kurven nach der rein sequentiellen ADK-Theorie auf einen gemeinsamen Wertebereich für die im Experiment erreichte Spitzenintensität im Laserfokus abbilden lassen.

Aus der Abbildung 5.12 lässt sich schließlich für die vorliegende Situation eine nachgewiesene Spitzenintensität im Laserfokus auf Basis der relativen Signalverhältnisse der beobachteten Ionenausbeuten von  $I_{\max} = (1.5 \pm 0.1) \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$  ablesen. Für  $\text{Xe}^{18+}$  ergeben sich zudem Abweichungen zwischen Theorie und Experiment, die aus der offenbar nur in der Simulation auftretenden Überkreuzung der Ionenausbeuten (vgl. Abb. 3.4) resultieren, weshalb auf die Eintragung der kalkulierten Werte verzichtet wird. Wie die Interpolation der theoretischen Kurven zeigt, liegt das gemessene  $\text{Xe}^{18+}$ -Signal dagegen in dem von seinen benachbarten Ionisationsstufen gleichermaßen favorisierten Intensitätsbereich. Für die Größe der Strahltaile der fs-Lichtpulse im Laserfokus ergibt sich damit

$$I_{\max} \approx 1.5 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2 = \frac{T_p^4 \cdot 500 \text{ mJ}}{\pi \cdot w_0^2 \cdot 55 \text{ fs}} \quad \Rightarrow \quad w_0 \approx 12 \mu\text{m} \quad . \quad (5.2)$$

Hierbei berücksichtigt  $T_p \approx 0.92$  die insgesamt viermalige Transmission des Laserlichts durch die in der Strahlführung enthaltenen unbeschichteten Glasplättchen (vgl. Abb. 5.3). Die mit dem zur Fokussierung eingesetzten Parabol-Spiegel (*PS*) theoretisch erreichbare beugungsbegrenzte Strahltaile [58] von

$$w_{0,\min} = 1.22 \lambda \frac{F_{PS}}{2R_{PS}} = 1.22 \cdot 795 \text{ nm} \frac{200.1 \text{ mm}}{65 \text{ mm}} = 3.0 \mu\text{m} \approx \frac{w_{0,\text{real}}}{4} \quad (5.3)$$

wird also deutlich verfehlt, weshalb auch die mit der vorliegenden Messapparatur erreichte Spitzenintensität nicht der nominellen Spitzenintensität des 25TW-Lasersystems von  $1 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$  entspricht.

Es stellt sich nun die Frage, welche physikalischen Prozesse als mögliche Ursache für eine solche dramatische Änderung der an der Mehrfach-Ionisation beteiligten Mechanismen verantwortlich gemacht werden können.

## 5.6. Ionisationdynamik bei schwach relativistischen Lichtintensitäten

Ein wichtiger Faktor ist der bislang vernachlässigte Einfluss der magnetischen Komponente des äußeren Laserlichtfeldes. Bei Lichtintensitäten oberhalb von  $1 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$  werden die elektromagnetischen Kräfte der fs-Laserpulse so stark, dass die durch Tunnelionisation freigesetzten Elektronen auf relativistische Geschwindigkeiten beschleunigt werden können. So erreicht die maximale kinetische Energie, die ein ausgelöstes Elektron im Rahmen des *Rescattering*-Modells aus dem äußeren linear polarisierten Lichtfeld ( $\lambda = 800\text{nm}$ ) bis zum Zeitpunkt der Rückkehr zum ionischen Atomrumpf aufnehmen kann, bereits bei einer Lichtintensität von  $2.7 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$  den Wert der Ruhemasse des Elektrons. Daher kann bei Intensitäten oberhalb von  $1 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$  der Einfluss der Magnetfeldkomponente des Laserlichts auf die Elektronenbewegung nicht länger vernachlässigt werden.

Dies hat jedoch dramatische Konsequenzen für den Mechanismus der Mehrelektronenionisation nach dem *Rescattering*-Modell zur Folge. Die Situation ist vergleichbar mit der Verwendung zirkular polarisierten Laserlichts in den Experimenten bei nicht-relativistischen Lichtintensitäten. Diesmal bewirkt der magnetische Anteil der Lorentzkraft auch bei linearer Polarisation der fs-Laserpulse eine Auslenkung des ersten ionisierten Elektrons auf eine elliptische Bahn, die eine direkte Rückkehr des im äußeren Lichtfeld beschleunigten Elektrons zum Atomkern verhindert. Folgerichtig sollte die Stoßwahrscheinlichkeit mit den am ionischen Rumpfatom verbliebenen anderen Elektronen stark abnehmen und damit das Auftreten von nicht-sequentieller Ionisation durch Elektronenstoß prinzipiell unterdrückt werden. Da nach dem aktuellen Stand der Erkenntnis das *Rescattering* den die nicht-sequentiellen Ionisationsprozesse dominierenden Mechanismus darstellt, muss also beim Übergang in den Bereich relativistischer Lichtintensitäten mit dem nahezu vollständigen Verschwinden der simultanen Mehrelektronenionisation gerechnet werden. Dieser Übergang erfolgt keinesfalls abrupt, wie eine genauere Analyse der kinematischen Anfangsbedingungen für das im äußeren Wechselfeld zu beschleunigende Elektron zeigt [60]. Je nach Intensität, bzw. elektrischer Feldstärke ergibt sich ein entsprechend hoher effektiver Potentialwall, den das Elektron bei der Feldemission zu durchtunneln hat. Am Tunnelausgang besitzt das Elektron (Elektron-Wellenpaket) dann auch eine spezifische Impulsverteilung senkrecht zur Feldrichtung,

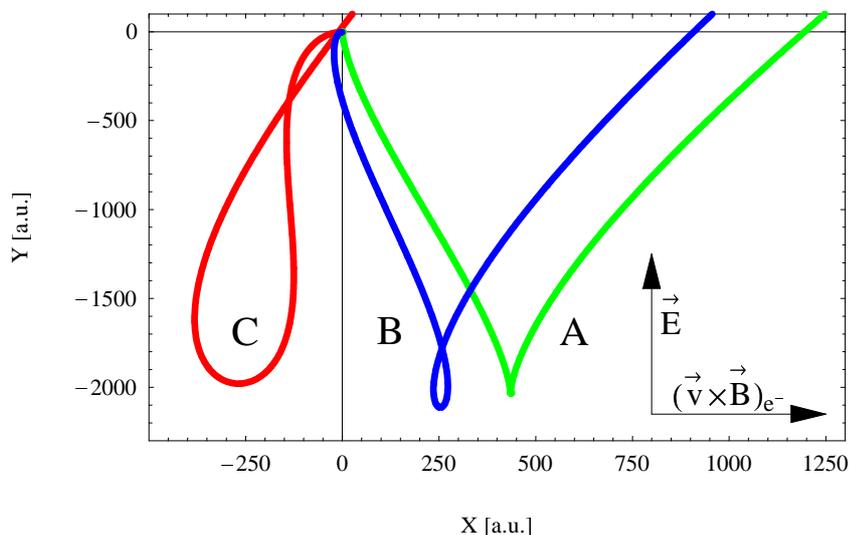


Abbildung 5.13.: Relativistische Trajektorien eines durch Tunnelionisation freigesetzten Elektrons ( $\vec{E}(t) = \vec{E}_0 \cos(\omega t + \phi_0)$  bei  $I = 1.5 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$ , Feldphase  $\phi_0 = 18^\circ$ ) für unterschiedliche Anfangs-Querimpulse des Elektron-Wellenpakets am Tunnelausgang [59] (Diskussion siehe Text). Das äußere elektrische Wechselfeld des in x-Richtung propagierenden Laserpulses ist linear in y-Richtung polarisiert.

A:  $p_x(t=0) = 0$ ; B:  $p_x(t=0) = -6 \text{ a.u.}$ ; C:  $p_x(t=0) = -17.9 \text{ a.u.}$

deren Breite umgekehrt proportional zur momentanen Ausdehnung des Wellenpaketes ist.

$$\psi(x) \propto \exp\left[-x^2/A_x^2\right] \quad \text{mit} \quad A_x = \sqrt{\frac{2 E_{ion}}{F_0}} \quad (5.4)$$

Die zugeordnete Querimpuls-Verteilung ergibt sich aus einer Fouriertransformation (FT) der Ortswellenfunktion:

$$\psi(x) \propto \exp\left[-\frac{x^2}{A_x^2}\right] \quad \xleftrightarrow{FT} \quad \hat{\psi}(p_x) \propto \exp\left[-\frac{A_x^2 p_x^2}{4}\right] \quad (5.5)$$

$$\Rightarrow \quad \hat{\psi}(p_x) \propto \exp\left[-p_x^2/\hat{A}_{p_x}^2\right] \quad \text{mit} \quad \hat{A}_{p_x} = \frac{2}{A_x} \quad (5.6)$$

Ob das nun freie Elektron-Wellenpaket nach der Beschleunigung im Lichtfeld in ausreichend geringem Abstand wieder zum ionischen Rumpfatom zurückkehrt, ist demnach entscheidend abhängig von Betrag und Richtung seines anfänglichen Querimpulses. In

Abbildung 5.13 sind dazu drei mögliche relativistische Elektronen-Trajektorien dargestellt. Auch bei relativistischen Intensitäten ist prinzipiell eine Rückkehr zum Kernort und damit ein *Rescattering*-Prozess möglich, wenn der Anfangs-Querimpuls ausreicht, um die Wirkung der magnetischen Komponente der Lorentzkraft zu kompensieren. Die mit zunehmender Spitzenintensität erwartete Abnahme der Elektronenstoß-Wahrscheinlichkeit bei der Rückstreuung sollte also weniger ausgeprägt auftreten und sich das vollständige Verschwinden simultaner Mehrelektronenionisation über einen größeren Intensitätsbereich erstrecken als anfänglich angenommen.

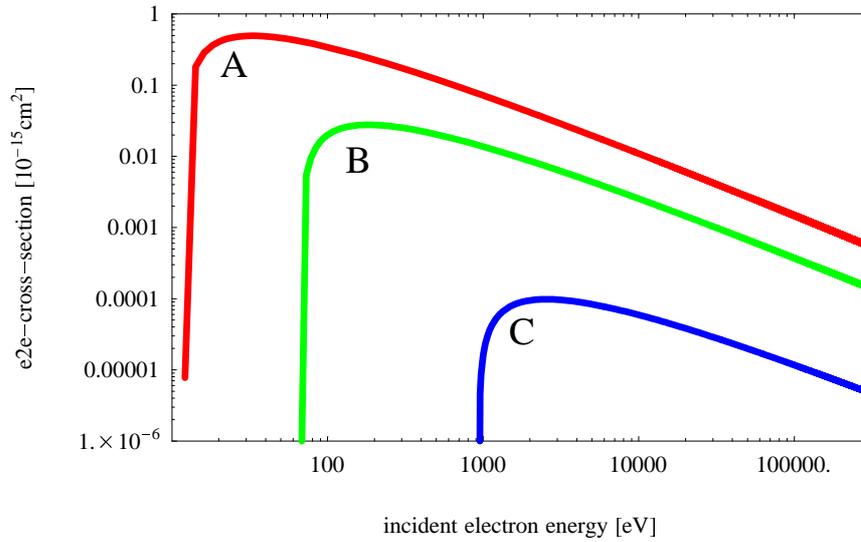
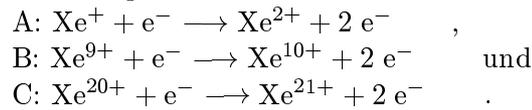
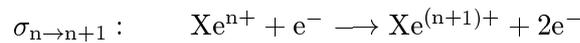


Abbildung 5.14.: e2e-Stoßquerschnitte nach Bernshtam et al. [61] für  $\text{Xe}^{n+}$ -Ionen.



Um durch eine quantitative Abschätzung entscheiden zu können, ob die im Rahmen der Intensitätsbestimmung beobachtete Verminderung der Ionenausbeuten von  $\text{Xe}^{20+}$  u.  $\text{Xe}^{21+}$  auf den Einfluss der soeben dargestellten relativistischen Effekte auf die nicht-sequentiellen Ionisationsprozesse zurückzuführen ist, bedarf es zusätzlich der genauen Kenntnis des beim *Rescattering* wirksamen e-2e-Stoßquerschnitts.



Nach einer von Bernshtam et al. [61] empirisch optimierten Formel, die eine Verbesserung der Formel von W. Lotz [62] darstellt, ergibt sich in Abhängigkeit von der im äußeren Wechselfeld aufgenommenen Energie des rückkehrenden Elektrons für den

## 5. Experimente bei höchsten Intensitäten

Feldphase $\phi_0$ [°]	$\frac{w_{ADK}^{Xe^{20+}}(E(\phi_0))}{w_{ADK}^{Xe^{20+}}(E(0))}$	$p_x(t=0)$ [a.u.]
0	1	$-21.5076 \pm 0.0005$
1		$-22.1778 \pm 0.0006$
18		$-17.3970 \pm 0.0009$
23	0.1	$-14.810 \pm 0.001$
25		$-13.7652 \pm 0.0007$
31	0.01	$-10.739 \pm 0.001$
37	0.001	$-8.056 \pm 0.001$

Tabelle 5.1.: Querimpulse für ein freigesetztes Elektron-Wellenpaket am Tunnelausgang in Abhängigkeit von der Startphase  $\phi_0$ , um nach der Exkursion im äußeren Wechselfeld ( $\vec{E}(t) = \vec{E}_0 \cos(\omega t + \phi_0)$ ) innerhalb eines Abstandes von  $r_{\text{Rescatter}} \leq 0.06$  a.u. wieder zum ionischen Rumpfatom ( $\text{Xe}^{20+}$ ) zurückzukehren. Für Phasenwinkel  $\phi_0 < 0^\circ$  ist keine Rückkehr möglich; für  $\phi_0 > 37^\circ$  ist die Intensität, bzw. Feldstärke zu gering, als dass eine merkliche Wahrscheinlichkeit für eine Tunnelionisation von  $\text{Xe}^{19+}$  besteht.

direkten Stoßionisations-Wirkungsquerschnitt eines freien Elektrons an einem  $\text{Xe}^{20+}$ -Ion (vgl. Abb. 5.14c):

$$\sigma_{20 \rightarrow 21}(E_{\text{kin},e^-}) \approx 5 \cdot 10^{-21} \dots 1 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2 \stackrel{\Delta}{=} 0.00018 \dots 0.0036 \text{ a.u.} \quad (5.7)$$

Im Rahmen eines semiklassischen Ansatzes kann dieser e-2e-Stoßquerschnitt nun als effektive Querschnittsfläche des ionischen Rumpfatoms betrachtet werden, die das im äußeren Wechselfeld beschleunigte Elektron durchdringen muss, um im Sinne des *Rescattering*-Modells eine simultane Mehrelektronenionisation auslösen zu können. Wie in Abbildung 5.14 dargestellt, nimmt der Wirkungsquerschnitt bei steigendem Ionisationsgrad stark ab. Ob die beobachtete Abnahme der simultanen Mehrfachionisation bei  $\text{Xe}^{20+}$  u.  $\text{Xe}^{21+}$  schon allein aufgrund des deutlich verminderten Wirkungsquerschnitts für hochgeladene Ionenrümpfe zustandekommt, bleibt Spekulation, da die Erzeugung dieser höheren Ladungszustände nur bei Lichtintensitäten gelingt, bei denen die Exkursion des rückkehrenden Elektrons im Lichtfeld zwangsläufig relativistischen Bedingungen unterliegt.

In numerischen Modellrechnungen der relativistischen Elektron-Trajektorien zeigt sich [59], dass bei einer Lichtintensität von  $I = 1.5 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$  unter Berücksichtigung der Wahrscheinlichkeit einer Tunnelionisation zum vorgegebenen Zeitpunkt (Phase der Laserschwingung) nur Elektronen mit einem anfänglichen Querimpuls von  $|p_x| > 8$  a.u. in der Lage wären, den Atomkern innerhalb eines Radius  $r_{\text{Rescatter}} \approx \sqrt{\sigma_{20 \rightarrow 21}} \leq 0.06$  a.u. zu passieren. Die Ergebnisse sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst.

Demgegenüber steht die Tatsache, dass nach Gl. 5.4-5.6 im Falle von  $\text{Xe}^{20+}$  mit  $E_{\text{ion}} = 583 \text{ eV}$  bei  $I = 1.5 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$  die Querimpulsverteilung lediglich eine Breite

von  $\hat{A}_{p_x} \approx 2$  a.u. besitzt und die Freisetzung eines Elektrons mit solch großem erforderlichen Querimpuls daher äußerst unwahrscheinlich ist. Die in den Messungen zur direkten Intensitätsbestimmung nachgewiesene Abnahme der Ionenausbeute von  $\text{Xe}^{21+}$  um praktisch eine Größenordnung gegenüber der theoretischen Vorhersagen aus Modellrechnungen unter Berücksichtigung simultaner Mehrelektronenionisation mit der empirischen Formel lässt sich also durch eine effektive Unterdrückung des *Rescattering*-Mechanismus infolge des bei Intensitäten oberhalb von  $1 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$  nicht mehr zu vernachlässigenden relativistischen Einflusses der Magnetfeldkomponente des Laserlichtfeldes erklären.

## 6. Zusammenfassung und Ausblick

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Untersuchungen zur atomaren Ionisationsdynamik in hochintensiven Lichtfeldern umfassen sowohl numerische Simulationen der von anderen Arbeitsgruppen aufgenommenen Messdaten als auch eigene Experimente zur Vermessung bis dahin nicht zugänglicher atomarer, bzw. ionischer Mehrelektronensysteme.

Bis zum heutigen Tage gibt es keine vollständige theoretische Beschreibung der physikalischen Mechanismen, die der Mehrelektronenionisation durch fs-Lichtpulse zugrundeliegen. Die nur rein sequentielle Ionisationsprozesse berücksichtigende ADK-Theorie zeigt deutliche Abweichungen von den in den Experimenten registrierten Ionenausbeuten, was als ein Auftreten von simultaner, kollektiver Mehrelektronenionisation interpretiert wird. Alle bislang aufgestellten Modelle und theoretischen Ansätze zur Beschreibung der nicht-sequentuellen Ionisationsprozesse sind für sich genommen nicht in der Lage, alle beobachteten Eigenschaften dieses Phänomens zufriedenstellend zu erklären. Das Auftreten einer simultanen Freisetzung mehrerer Elektronen lässt sich qualitativ am besten mit dem *Rescattering*-Mechanismus beschreiben, während die gemessenen Ionenausbeuten quantitativ im Rahmen des *Shake*-Modells recht gut nachvollzogen werden können. Die absolut beste Übereinstimmung mit den Messdaten erreicht die S-Matrix-Theorie, deren abstrakte Darstellung der physikalischen Verhältnisse jedoch kein anschauliches Bild des so beschriebenen Ionisationsmechanismus liefern kann. Die in dieser Arbeit vorgestellten numerischen Simulationen basieren dagegen auf einer empirischen Formel zur Berechnung der nicht-sequentuellen Beiträge am Ionisationsprozess. Danach lässt sich die Wahrscheinlichkeit für einen nicht-sequentuellen Ionisationsprozess aus der rein sequentiellen Ionisationswahrscheinlichkeit berechnen, wenn die atomaren Parameter des einzelnen Elektrons durch die entsprechenden Effektivwerte für ein Mehrelektronen-Quasiteilchen ersetzt werden. Obwohl die damit verbundene Vorstellung der simultanen Mehrelektronenionisation als einen kollektiven Tunnelprozess mehrerer Elektronen nicht vermag, die im Experiment beobachteten Ionenausbeuten quantitativ korrekt wiederzugeben, rechtfertigt die trotzdem bemerkenswert gute Übereinstimmung dieser Modellrechnungen mit den experimentellen Resultaten die weitere Verwendung der empirischen Formel. Durch eine neuartige, in dieser Arbeit vorgestellte Ergänzung der auf dem *Shake*-Mechanismus basierenden Beschreibung der nicht-sequentuellen Mehrelektronenionisation mit den Fähigkeiten der empirischen Formel war es möglich, die

Qualität der theoretischen Vorhersagen mit der empirischen Formel über das bisherige Maß hinaus zu verbessern.

Das Fehlen einer vollständigen theoretischen Beschreibung der physikalischen Mechanismen, die zur nicht-sequentiellen Mehrelektronenionisation führen, rechtfertigt die fortgesetzte experimentelle Untersuchung der Ionisationsdynamik atomarer Systeme. Nur die stetige Erweiterung der bekannten Datenmenge durch neue Messungen an bislang nicht beachteten Mehrelektronensystemen erlaubt die fortwährende Überprüfung der bereits bekannten Modelle auf ihre Richtigkeit und bildet die Grundlage für die Aufstellung umfassenderer Theorien zur besseren Beschreibung aller bei der Photoionisation mit fs-Laserpulsen auftretenden Effekte. Die vorliegende Arbeit liefert dazu ebenfalls einen Beitrag. An zwei verschiedenen Messapparaturen wurden sowohl im Intensitätsbereich unterhalb von  $1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  als auch bei Intensitäten bis nahe  $1 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$  atomare und ionische Mehrelektronensysteme auf ihr intensitätsabhängiges Ionisationsverhalten hin untersucht. Eine besondere Bedeutung kommt dabei der Vermessung von Systemen mit heliumartiger Elektronenkonfiguration zu, da hier die Ionisationsdynamik an einem überschaubar auf zwei Elektronen reduzierten, stark korrelierten fundamentalen System besonders gut studiert werden kann. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden daher die Ionenausbeuten von Indium<sup>+</sup>, Neon<sup>6+</sup> und Lithium<sup>+</sup> erstmals experimentell untersucht.

Ausgangszustand (Elektron-Orbital)	$E_{\text{ion,total}}$ [eV]	Teiler-Verhältnis $E_{\text{ion}}(1):E_{\text{ion}}(2)$	exp. Quotient Doppel- zu Einfach-Ionisation
He ( $1s^2$ )	79	1:2	$\text{He}^{2+}/\text{He}^+ = 0.002$
Li <sup>+</sup> ( $1s^2$ )	198	3:5	$\text{Li}^{3+}/\text{Li}^{2+} = 0.08$
In <sup>+</sup> ( $5s^2$ )	47	2:3	$\text{In}^{3+}/\text{In}^{2+} = 0.1$
Ne <sup>6+</sup> ( $2s^2$ )	446	7:8	$\text{Ne}^{8+}/\text{Ne}^{7+} = 0.12$

Ein direkter Vergleich mit den von Walker et al.[17] bei Helium gemessenen Werten zeigt eine eindeutige Abhängigkeit des Verhältnisses von Doppel- zu Einfach-Ionisation vom Teiler-Verhältnis der Ein-Elektronen-Potentiale. Die absolute Größe der totalen Bindungsenergie ( $E_{\text{ion,total}} = \sum E_{\text{ion}}(i)$ ) übt dagegen offenbar keinen Einfluss auf die Gewichtung von sequentiell zu nicht-sequentiell Anteil am Gesamtprozess der Ionisation aus. Mit zunehmend gleich hoher Bindungsenergie der beiden s-Elektronen steigt auch die simultane Doppelionisationsrate an. Im Rahmen des *Rescattering*-Modells lässt sich dies als eine Erhöhung des Wirkungsquerschnitts für den Elektron-Elektron-Stoß bei der Rückkehr des im äußeren Wechselfeld beschleunigten Elektrons zum ionischen Rumpfatome verstehen, wenn die Differenz der Bindungsenergien beider Stoßpartner immer geringer wird.

Ferner wurden in Umkehrung der bisherigen Praxis die auf dem Gebiet der Ionisationsdynamik in hochintensiven Lichtfeldern gewonnenen Erkenntnisse messtechnisch eingesetzt, um eine direkte Bestimmung der im Strahlfokus der zweiten Messappatur

erreichbaren Spitzenintensität durchzuführen. Diese Methode ist wesentlich genauer als die Berechnung der nominell verfügbaren Intensität aus Einzelmessungen von Pulsenergie, Pulsdauer und Strahlfokus-Durchmesser. Die zerstörungsfreie Bestimmung des Fokusbereichs mittels optischer Abbildung ist zudem bei Intensitäten oberhalb von  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> aufgrund der sehr hohen Energiedichte der fokussierten Laserpulse ohnehin kaum mehr möglich. Die Genauigkeit des Verfahrens, die Intensität von fs-Laserpulsen direkt aus der relativen Teilchenanzahl der im Laserfokus produzierten Ladungszustände zu ermitteln, kann durch die richtige Wahl des zu ionisierenden Elements individuell auf den erwarteten Intensitätsbereich optimal abgestimmt werden. Verwendet man jeweils die Atomsorte, deren Ionisationspotentiale beim erwarteten Intensitätswert am dichtesten aufeinanderfolgen, so sollte der Fehler bei dieser Art der Intensitätsbestimmung kaum mehr als  $\pm 10\%$  betragen; der aus drei Einzelmessungen zusammengesetzte Messfehler des herkömmlichen Verfahrens lässt sich dagegen nur mit sehr hohem Aufwand auf unter  $\pm 20\%$  bringen.

Alle hier vorgestellten Messungen im Intensitätsbereich bis nahe  $1 \cdot 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> zeigen eine fortwährende Gültigkeit der theoretischen Modelle. So lassen sich die in den Experimenten beobachteten Überhöhungen der Ionenausbeuten gegenüber den rein sequentiellen Vorhersagen der ADK-Theorie qualitativ durch einen *Rescattering*-Mechanismus erklären und unter Verwendung der empirischen Formel auch quantitativ zufriedenstellend nachmodellieren, obwohl diese Modelle ursprünglich aufgrund von Beobachtungen bei Lichtintensitäten im Bereich von  $10^{14} - 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> aufgestellt worden sind. Die physikalischen Mechanismen der Mehrelektronenionisation bleiben demnach im Intensitätsbereich von  $10^{16} - 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> unverändert.

Bei einer weiteren Steigerung der Intensität bis an die Grenze des zur Zeit im Experiment nachweislich verfügbaren Spitzenwertes beginnt sich eine Änderung der physikalischen Randbedingungen abzuzeichnen. Bei Lichtintensitäten oberhalb von  $1 \cdot 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> werden die elektromagnetischen Kräfte der fs-Laserpulse so stark, dass die durch Tunnelionisation freigesetzten Elektronen auf relativistische Geschwindigkeiten beschleunigt werden können. Bei diesen sog. relativistischen Lichtintensitäten kann der Einfluss der magnetischen Komponente des äußeren Laserlichtfeldes auf die Exkursionsbewegung des ersten Elektrons im Rahmen des *Rescattering*-Mechanismus nicht mehr vernachlässigt werden. Dies hat bei den hier vorgestellten Messungen zur direkten Intensitätsbestimmung im Strahlfokus bei  $1.5 \cdot 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> bereits deutliche Auswirkungen auf die registrierten Ionenausbeuten von Xe<sup>20+</sup> und vor allem Xe<sup>21+</sup>. Verglichen mit nicht-relativistischen Modellrechnungen unter Einbeziehung simultaner Mehrelektronenionisation mit Hilfe der empirischen Formel zeigen diese beiden Ladungszustände ein um bis zu einer Größenordnung reduziertes Messsignal. Durch die Tatsache, dass die im Experiment registrierten Ionenausbeuten bei diesen schwach relativistischen Lichtintensitäten wiederum mit Rechnungen nach dem rein sequentiellen ADK-Modell angemessen beschrieben werden können, lässt sich dieses Verhalten als eine Abnahme der simultanen Ionisationsraten infolge eines durch relativistische Effekte verminderten Wirkungsquer-

---

schnitts für *Rescattering*-Prozesse deuten.

Der endgültige Nachweis für die Richtigkeit dieser Interpretation ist jedoch wiederum nur durch integrale Messungen der intensitätsabhängigen Ionenausbeuten zu erbringen. Die Erzeugung noch höherer relativistischer Lichtintensitäten für Untersuchungen der atomaren Ionisationsdynamik ist daher eindeutig der nächste, unbedingt notwendige experimentelle Schritt auf dem Wege zu einem umfassenderen Verständnis der zugrundeliegenden physikalischen Prozesse. Mit der im Rahmen der vorliegenden Arbeit aufgebauten Messapparatur sollte dies prinzipiell möglich sein. Die bislang noch deutlich oberhalb der Beugungsgrenze liegende minimale Strahltaile des zur Fokussierung der fs-Lichtpulse eingesetzten Parabol-Spiegels sollte bei Verwendung einer fortentwickelten UHV-tauglichen Justage-Halterung eine Steigerung der erzielbaren Spitzenintensität im Fokusvolumen um den Faktor 2-10 gewährleisten. Dabei ist allerdings zu bedenken, dass mit einer Verringerung der Strahltaile unmittelbar auch eine entsprechende Verkleinerung des nutzbaren Wechselwirkungsvolumens verbunden ist. Ein zu kleines Fokusvolumen reduziert die Anzahl ionisierbarer und damit nachweisbarer Ladungszustände auf ein Maß, das zur integralen Messung der intensitätsabhängigen Ionensignale über einen Dynamikbereich von mindestens 2 Größenordnungen nicht mehr ausreicht. Bei Verwendung von fs-Lichtpulsen eines weiter aufgerüsteten CPA-Lasersystems mit dann 100TW Pulsleistung, wie es bereits im Bereich B des Max-Born-Instituts im Entstehen ist, sollte schließlich auch bei nur angemessen optimiertem Fokusbereich die Bereitstellung von relativistischen Lichtintensitäten für Experimente zur atomaren Ionisationsdynamik in naher Zukunft realisiert werden können.

## A. Veröffentlichungen im Rahmen dieser Arbeit

- H. MAEDA, M. DAMMASCH, U. EICHMANN AND W. SANDNER:  
*Collective Multi-Electron Tunneling in State- and Charge-Selected Atoms in Strong Fields.* in *Ultrafast Phenomena XI*,  
edited by T. Elsaesser, J.G. Fujimoto, D.A. Wiersma, W. Zinth  
Springer Series in Chemical Physics 63:432, Springer-Verlag Berlin Heidelberg,  
1998
- H. MAEDA, M. DAMMASCH, U. EICHMANN, W. SANDNER AND  
A. BECKER, F.H.M. FAISAL:  
*Strong field multiple ionization of Krypton.*  
Phys. Rev. A, 62:035402, 2000.
- U. EICHMANN, M. DÖRR, W. BECKER, M. DAMMASCH AND W. SANDNER:  
*Collective Multi-Electron Tunneling Ionization in Strong Fields.*  
in *Multiphoton Processes: ICOMP VIII, 8<sup>th</sup> International Conference*,  
edited by L.F. DiMauro, R.R. Freeman, K.C. Kulander  
AIP Conference Proceedings 525:199, Melville New York, 2000
- H. MAEDA, M. DAMMASCH, U. EICHMANN AND W. SANDNER:  
*Strong-field double ionization of He-like systems: The case of  $In^+$  ions.*  
Phys. Rev. A, 63:025401, 2001.

## B. Lebenslauf

**Matthias Fritz Dammasch**

### PERSÖNLICHE DATEN

---

Geburtsdatum: 26.04.1971  
Geburtsort: Berlin, Bezirk Wedding  
Staatsangehörigkeit: deutsch  
Familienstand: ledig

### AUSBILDUNG

---

1977 - 1983 Bruno-Taut-Grundschule Berlin,  
Bezirk Neukölln

1983 - 1990 Albert-Einstein-Oberschule Berlin,  
Bezirk Neukölln

WS 1990/91 - SS 1996 Studium der Physik an der Technischen  
Universität Berlin, Bezirk Charlottenburg

10.1992 Vordiplom

07.1995 - 07.1996 Anfertigung der Diplomarbeit am  
Max-Born-Institut Berlin, Bezirk Treptow  
Thema der Diplomarbeit: „Laserkühlung von  
metastabilem Helium in elektrischen Feldern“

09.1996 Abschluss des Studiums - Diplom-Physiker

01.10.1996 - 31.10.1997 Zivildienst bei der Johanniter-Unfall-Hilfe  
KV Berlin

01.11.1997 Beginn der Promotion bei Prof. Sandner am  
Max-Born-Institut, Berlin und an der  
Technischen Universität, Berlin

## C. Danksagung

Ich danke Herrn Prof. Dr. W. Sandner für die interessante Themenstellung und die Möglichkeit, die vorliegende Arbeit im Bereich B des Max-Born-Instituts anzufertigen.

Mein besonderer Dank gilt meinem Betreuer Herrn Dr. U. Eichmann für die ausgesprochen freundschaftliche Zusammenarbeit bei der Lösung von Problemstellungen in der Theorie und bei den Experimenten.

Weiter möchte ich mich bei Herrn Dr. M. Kalashnikov und seinen Mitarbeitern für die gute Kooperation bei der Bereitstellung des Höchstfeld-Lasersystems für die Messungen bedanken.

Allen anderen Kolleginnen und Kollegen am Max-Born-Institut, die mir während der vergangenen Jahre bei zahllosen Gelegenheiten hilfreich zur Seite standen, möchte ich hiermit ebenfalls meinen Dank aussprechen.

# Literaturverzeichnis

- [1] P.H. BUCKSBAUM, R.R. FREEMAN, M. BASHKANSKY AND T.J. MCILRATH: *Role of the ponderomotive potential in above-threshold ionization*. J. Opt. Soc. Am. B, 4(5):760, 1987.
- [2] J. LUDWIG: *Molekularer Wasserstoff in intensiven Lichtfeldern*. Dissertation, Technische Universität Berlin, 1997.
- [3] L.V. KELDYSH: *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*. Sov. Phys. JETP, 20(5):1307, 1965.
- [4] A. EINSTEIN: *Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt*. Ann. Physik, 17:132, 1905.
- [5] L.D. LANDAU AND E.M. LIFSHITZ: *Quantum Mechanics*. Pergamon Press Ltd., Oxford, 3. Auflage, 1977.
- [6] R.R. FREEMAN AND P.H. BUCKSBAUM: *Investigations of above-threshold ionization using subpicosecond laser pulses*. J. Phys. B, 24:325, 1991.
- [7] K. BURNETT, V.C. REED AND P.L. KNIGHT: *Atoms in ultra-intense laser fields*. J. Phys. B, 26:561, 1993.
- [8] P. AGOSTINI, F. FABRE, G. MAINFRAY, G. PETITE AND N.K. RAHMAN: *Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms*. Phys. Rev. Lett., 42:1127, 1979.
- [9] P. KRUIT, J. KIMMAN, H.G. MULLER AND M. v. WIEL: *Electron spectra from multiphoton ionization of xenon at 1064, 532 and 355nm*. Phys. Rev. A, 28:248, 1983.
- [10] L.A. LOMPRES, A. L'HUILLIER, G. MAINFRAY AND C. MANUS: *Laser intensity effects in the energy distribution of electrons produced in multiphoton ionization of rare gases*. J. Opt. Soc. Am. B, 2(12):1906, 1985.
- [11] M.V. AMMOSEV, N.B. DELONE AND V.P. KRAINOV: *Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field*. Zh. Eksp. Teor. Fiz., 91:2008–2013, 1986.

- [12] S. AUGST, D.D. MEYERHOFER, D. STRICKLAND AND S.L. CHIN: *Laser ionization of noble gases by Coulomb-barrier suppression*. J. Opt. Soc. Am. B, 8(4):858, 1991.
- [13] T. AUGUSTE, P. MONOT, L.A. LOMPRES, G. MAINFRAY AND C. MANUS: *Multiply charged ions produced in noble gases by a 1 ps laser pulse at  $\lambda = 1053\mu\text{m}$* . J. Phys. B, 25:4181, 1992.
- [14] T.D.G. WALSH, F.A. ILKOV, J.E. DECKER AND S.L. CHIN: *The tunnel ionization of atoms, diatomic and triatomic molecules using intense  $10.6\mu\text{m}$  radiation*. J. Phys. B, 27:3767, 1994.
- [15] G.D. BOYD AND D.A. KLEINMANN: *Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams*. J. Appl. Phys., 39(8):3597, 1968.
- [16] M.D. PERRY, O.L. LANDEN, A. SZÖKE AND E.M. CAMPBELL: *Multiphoton ionization of the noble gases by an intense  $10^{14} \text{ W/cm}^2$  dye laser*. Phys. Rev. A, 37(3):747, 1988.
- [17] B. WALKER, B. SHEEHY, L.F. DIMAURO, K.J. SCHAFER AND K.C. KULANDER: *Precision Measurement of Strong Field Double Ionization of Helium*. Phys. Rev. Lett., 73(9):1227, 1994.
- [18] S. LAROCHELLE, A. TALEBPOUR AND S.L. CHIN: *Non-sequential multiple ionization of rare gas atoms in a Ti:Sapphire laser field*. J. Phys. B, 31:1201, 1998.
- [19] H. MAEDA, M. DAMMASCH, U. EICHMANN, AND W. SANDNER AND A. BECKER AND F.H.M. FAISAL: *Strong field multiple ionization of Krypton*. Phys. Rev. A, 62:035402, 2000.
- [20] S. AUGST, D. STRICKLAND, D.D. MEYERHOFER, S.L. CHIN AND J.H. EBERLY: *Tunneling Ionization of Noble Gases in High-Intensity Laser Field*. Phys. Rev. Lett., 63:2212, 1989.
- [21] B. WALKER, E. MEVEL, B. YANG, P. BREGER, J.P. CHAMBARET, A. ANTONETTI, L.F. DIMAURO AND P. AGOSTINI: *Double Ionization in the perturbative and tunneling regime*. Phys. Rev. A, 48:894, 1993.
- [22] D.N. FITTINGHOFF, P.R. BOLTON, B. CHANG AND K. C. KULANDER: *Polarisation dependence of tunneling ionization of helium and neon by 120-fs pulses at 614 nm*. Phys. Rev. A, 49(3):2174, 1994.
- [23] H. MAEDA, M. DAMMASCH, U. EICHMANN AND W. SANDNER: *Strong-field double ionization of He-like systems: The case of  $\text{In}^+$  ions*. Phys. Rev. A, 63:025401, 2001.
- [24] J. S. PARKER, E. SMYTH AND K.T. TAYLOR: *Intense-field multiphoton ionization of helium*. J. Phys. B, 31:571, 1998.

- 
- [25] D. DUNDAS, K.T. TAYLOR, J. S. PARKER AND E. SMYTH: *Intense-field multi-photon ionization of helium*. J. Phys. B, 32:231, 1999.
- [26] K.T. TAYLOR, J. S. PARKER, D. DUNDAS, E. SMYTH AND S. VIVIRITO: *Laser-Driven Helium in Full Dimensionality*. Laser Physics, 9:98, 1999.
- [27] J.B. WATSON, A. SANPERA, D.G. LAPPAS, P.L. KNIGHT AND K. BURNETT: *Nonsequential Double Ionization of Helium*. Phys. Rev. Lett., 78(10):1884, 1997.
- [28] D. BAUER: *Two-dimensional, two-electron model atom in a laser pulse: Exact treatment, single-active-electron analysis, time-dependent density-functional theory, classical calculations and nonsequential ionization*. Phys. Rev. A, 56(4):3028, 1997.
- [29] A. BECKER AND F.H.M. FAISAL: *Interplay of electron correlation and intense field dynamics in the double ionization of helium*. Phys. Rev. A, 59(3):1742, 1999.
- [30] A. BECKER AND F.H.M. FAISAL: *Production of high-charge states of Xe in a femtosecond laser pulse*. Phys. Rev. A, 59(5):3182, 1999.
- [31] A. BECKER AND F.H.M. FAISAL: *S-matrix analysis of ionization yields of noble gas atoms at the focus of Ti:sapphire laser pulses*. J. Phys. B, 32:335, 1999.
- [32] U. EICHMANN, M. DÖRR, H. MAEDA, W. BECKER AND W. SANDNER: *Collective multi-electron tunneling in strong laser fields*. Phys. Rev. Lett, 84:3550, 2000.
- [33] B.A. ZON: *Many-electron tunneling in atoms*. Sov. Phys. JETP, 89(2):219, 1999.
- [34] R. WEHLITZ, F. HEISER, O. HEMMERS, B. LANGER, A. MENZEL AND U. BECKER: *Electron-Energy and -Angular Distributions in the Double Photoionization of Helium*. Phys. Rev. Lett, 67:3764, 1991.
- [35] D.N. FITTINGHOFF, P.R. BOLTON, B. CHANG AND K. C. KULANDER: *Observation of Nonsequential Double Ionization of Helium with Optical Tunneling*. Phys. Rev. Lett., 69:2642, 1992.
- [36] P.B. CORKUM: *Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization*. Phys. Rev. Lett., 71:1994, 1993.
- [37] A. L'HUILLIER, K.J. SCHAFER AND K.C. KULANDER: *High-order harmonic generation in xenon at 1064nm: The role of phase matching*. Phys. Rev. Lett., 66(17):2200, 1991.
- [38] B. WALKER, B. SHEEHY, K.C. KULANDER AND L.F. DIMAURO: *Elastic Rescattering in the Strong Field Tunneling Limit*. Phys. Rev. Lett., 77(25):5031, 1996.

- [39] R. MOSHAMMER, B. FEUERSTEIN, W. SCHMITT, A. DORN, C.D. SCHRÖTER, J. ULLRICH, H. ROTTKE, C. TRUMP, M. WITTMANN, G. KORN, K. HOFFMANN W. SANDNER: *Momentum distributions of  $Ne^{n+}$  ions created by an intense ultrashort laser pulse.* Phys. Rev. Lett, 84:447, 2000.
- [40] A. TALEBPOUR, C.-Y. CHIEN, Y. LIANG, S. LAROCHELLE AND S.L. CHIN: *Non-sequential ionization of Xe and Kr in an intense femtosecond Ti:sapphire laser pulse.* J. Phys. B, 30:1721, 1997.
- [41] J.C. SLATER. Phys. Rev., 36:57, 1930.
- [42] BRITTON CHANG, PAUL R. BOLTON AND DAVID N. FITTINGHOFF: *Closed-form solutions for the production of ions in the collisionless ionization of gases by intense lasers.* Phys. Rev. A, 47(5):4193, 1993.
- [43] W.H. PRESS, S.A. TEUKOLSKY, W.T. VETTERLING AND B.P. FLANNERY: *Numerical Recipes in C.* Cambridge University Press, 2nd , 1992.
- [44] ROBERT D. COWAN: *The Theory Of Atomic Structure And Spectra.* University Of California Press, 1981.
- [45] A. BECKER: *Private Mitteilungen.* 2000.
- [46] M.P. KALASHNIKOV, P.V. NICKLES, M. SCHNUEERER, I. WILL AND W. SANDNER: *Multi-terawatt hybrid Ti:Sa-Nd:glass dual-beam laser: a novel XUV laser driver.* Opt. Comm., 133:216, 1997.
- [47] D. STRICKLAND AND G. MOUROU: *Compression Of Amplified Chirped Optical Pulses.* Opt. Commun., 56(3):219, 1985.
- [48] P. MAINE, D. STRICKLAND, P. BADO, M. PESSOT AND G. MOUROU: *Generation of Ultrahigh Peak Power Pulses by Chirped Pulse Amplification.* IEEE J. Quantum Electron., 24(2):398, 1988.
- [49] M. MAIER, W. KAISER AND J.A. GIORDMAINE: *Intense light bursts in the stimulated Raman effect.* Phys. Rev. Lett., 17:1275, 1966.
- [50] J.A. ARMSTRONG: *Measurement of picosecond laser pulse widths.* Appl. Phys. Lett., 10:16, 1967.
- [51] S.A. AKHMANOV, V.A. VYSLOUKH AND A.S. CHIRKIN: *Optics of femtosecond laser pulses.* American Institute of Physics, 1992.
- [52] KENNETH L. SALA, GERALDINE A. KENNEDY-WALLACE AND GREGORY E. HALL: *CW Autocorrelation Measurements of Picosecond Laser Pulses.* IEEE Journ. Quant. Electr., QE-16(9):990, 1980.

- [53] W.C. WILEY I.H. MCLAREN: *Time-of-Flight Mass Spectrometer with Improved Resolution*. Rev. Sc. Instr., 26(12):1150, 1955.
- [54] C. ROSEN: *Planetarische Atome in externen Feldern*. Dissertation, Technische Universität Berlin, 1999.
- [55] D. KAISER: *Laserspektroskopie des  $1s3d$ -Anticrossings des Helium-Spektrums im elektrischen Feld*. Dissertation, Technische Universität Berlin, 1993.
- [56] M. DAMMASCH: *Laserkühlung von metastabilem Helium in elektrischen Feldern*. Diplomarbeit, Technische Universität Berlin, 1996.
- [57] ANTHONY E. SIEGMAN: *Lasers*. University Science Books, New York, 1986.
- [58] EUGENE HECHT AND ALFRED ZAJAC: *Optics*. Addison-Wesley Publishing Group, New York, 4. Auflage, 1979.
- [59] E. LENZ: *Private Mitteilungen*. 2001.
- [60] B. GOTTLIEB, A. LOHR, W. BECKER AND M. KLEBER: *Dynamics of electronic wave packets in field emission and intense-field laser-atom physics*. Phys. Rev. A, 54(2):1022, 1999.
- [61] V.A. BERNSTAM, YU V. RALCHENKO AND Y. MARON: *Empirical formula for cross section of direct electron-impact ionization of ions*. J. Phys. B, 33:5025, 2000.
- [62] W. LOTZ. *Z. Phys.*, 216:241, 1968.