Anregung und Beschleunigung neutraler atomarer Systeme in starken Laserfeldern

vorgelegt von
Diplom-Physiker Thomas Nubbemeyer
geboren in Ibbenbüren, Nordrhein-Westfalen

Von der Fakultät II - Mathematik und Naturwissenschaften -
der Technischen Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades
Doktor der Naturwissenschaften
- Dr. rer. nat. -
genehmigte Dissertation

Promotionsausschuss:

Vorsitzender: Prof. Dr. A. Knorr
Berichter / Gutachter: Prof. Dr. W. Sandner
Berichter / Gutachter: Prof. A. Peters Ph.D.

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 24.6.2010

Berlin 2010
D 83

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **1**

2 Atome in starken Laserfeldern **5**
2.1 Grundlagen der Licht-Materie-Wechselwirkung 5
2.1.1 Multiphotonenionisation 7
2.1.2 Tunnelionisation 9
2.1.3 Ionisationsraten 10
2.2 Rückstreumodell und sekundäre Prozesse 12
2.2.1 Das Rückstreumodell 12

3 Experimenteller Nachweis angeregter Atome **16**
3.1 Detektionsverfahren zum direkten Nachweis 16
3.1.1 Vakuumapparatur und Messtechnik 17
3.1.2 Bestimmung der Laserintensität im Fokus 24
3.2 Edelgasatome in angeregten Zuständen 28
3.2.1 Abbildungsmaßstab 29
3.2.2 Flugzeitspektren 30
3.2.3 Lebensdauer und Zerfall der angeregten Zustände 34
3.2.4 Besetzungsverteilung angeregter Zustände in schweren Edelgasen . 36
3.3 Verhältnis von Anregung und Ionisation 40
3.3.1 Polarisationsabhängigkeit 42
3.3.2 Einfluss des Laser-Intensitätsprofils auf die Ortsverteilung 44

4 Erzeugung neutraler angeregter Heliumatome durch kurze Laserpulse **52**
4.1 Messungen an Helium 52
4.1.1 Polarisationsabhängigkeit 52
4.1.2 Intensitätsabhängigkeit der Produktion angeregter Heliumatome . 53
4.2 Verhinderte Ionisation und Bildung hochangeregter Zustände 58
4.2.1 Der FTI-Prozess: Erweiterung des Rückstreumodells 58
4.2.2 Einfluss von Phase und Querimpuls 60
4.3 Vergleich der semiklassischen Simulation mit quantenmechanischen Rechnungen 65
4.4 Vergleich von Modell und Experiment 67
4.5 Besetzungsverteilung der Rydbergzustände im Experiment 70

5 Beschleunigung neutraler Atome durch die ponderomotorische Kraft 76
5.1 Ponderomotorische Kraft auf ein geladenes Teilchen 80
5.2 Beschleunigung neutraler Helium- und Neonatome 85

6 Neutrale angeregte Molekülfragmente 92
6.1 Dissoziationsprozesse 92
6.1.1 Coulomb-Explosion 92
6.1.2 Bond-Softening 93
6.2 Angeregte neutrale Fragmente bei der Dissoziation von Wasserstoffmolekülen 95
6.2.1 Monte-Carlo-Simulation der FTI bei Wasserstoff 103
6.3 Dissoziation von Stickstoffmolekülen in starken Laserfeldern 110
6.3.1 Coulombexplosion nach Enhanced Ionization 110
6.3.2 Zerfallskanäle mit angeregten Stickstoffatomen 111

7 Zusammenfassung und Ausblick 116

8 Veröffentlichungen im Rahmen dieser Arbeit 120

Abbildungsverzeichnis I

Literaturverzeichnis IV

1 Einleitung

Die Wechselwirkungsprozesse von Atomen und Molekülen mit dem Feld eines Lasers sind hochaktueller Gegenstand der Forschung in der Physik. Dabei sind Experimente und die theoretischen Modelle der Laser-Materie-Wechselwirkung kontinuierlich erweitert worden. So wurden Multiphotonenanregung, Multiphotonenionisation und die *Above-Threshold-Ionization (ATI)* [1] als Prozesse dieser Wechselwirkung gemessen und beschrieben. Zur physikalischen Beschreibung wurden das Multiphotonenbild und die Störungstheorie herangezogen, welche diese Prozesse einschließlich der ATI, bei der in Atom mehr Photonen absorbiert als zur Ionisation notwendig gewesen wäre, bei den damals verfügbaren Laserintensitäten erklären konnten.
Mit fortschreitender Entwicklung der Lasertechnologie und dem Erreichen höherer Intensitäten traten jedoch Wechselwirkungsprozesse auf, die mit einem Multiphotonenansatz nicht mehr erklärt werden konnten. Dies waren insbesondere Plateaubereiche in den ATI-Spektren [2] und auch in den Spektren aus der Erzeugung Hoher Harmonischer (HHG) [3, 4]. Die Feldstärke des Laserpulses ist so groß, dass eine theoretische Behandlung über die Störungstheorie nicht möglich ist. *Keldysh* [5] trennte bereits 1965 die beiden Bereiche der Licht-Materie-Wechselwirkung in einen Multiphotonenbereich für kleine Intensitäten und einen Bereich, bei dem die Elektronen durch Tunnelionisation freigesetzt werden. Bei diesem Modell, das einen semiklassischen Ansatz beinhaltet, wird das atomare Potential durch das starke Laserfeld so weit "verbogen", dass ein Elektron statt einer Potentialwand eine Barriere endlicher Breite vorfindet, die es gemäß dem quantenmechanischen Tunneleffekt durchdringen kann. Die Ionisationsraten dieses Tunnelmodells können berechnet werden ([6, 7]) und liefern korrekte Ergebnisse für sequentielle Mehrfachionisation komplexer Atome in einem elektrischen Wechselfeld.
Bei der Wechselwirkung von Atomen mit kurzen, intensiven Laserpulsen ($I > 10^{14}\, W/cm^2$) weichen die beobachteten Prozesse von den theoretischen Vorhersagen des einfachen Tunnelbildes ab. Die Nichtsequentielle Mehrfachionisation (NSMI) [8, 9], der HHG-Prozess und das ATI-Plateau sind nichtlineare Prozesse, für deren Erklärung *P. Corkum*[10] das Rückstreumodell entwickelte: Das durch Tunnelionisation freigesetzte Elektron wird im Laserfeld zunächst beschleunigt. Ändert das Feld nach einer halben Periode sein Vorzeichen, wird auch das Elektron zurück zum Kern gezogen und gibt die gewonnene Energie in einem Stoßprozess mit dem Ionenrumpf ab. Dies führt entweder zur Entfernung eines weiteren Elektrons (NSMI) oder zur Rekombination in den Grundzustand unter Aussendung eines UV-Photons (HHG). Letzterer Prozess ist

auch die Grundlage für die Erzeugung von Attosekundenpulsen, was zur Zeit in der Forschung ein viel beachteter Themenkomplex ist.

Im Rückstreumodell ist allerdings das Coulombpotential des Ions noch nicht enthalten, dessen Einfluß auf die Elektronendynamik im Rahmen den Rückstreumodells wurde bislang nicht diskutiert. In dieser Arbeit wird die Bildung von angeregten Zuständen in Atomen und Molekülen durch einen kurzen intensiven Laserpuls untersucht, welche durch den Einfluss des Coulombpotentials auf das Elektron entstehen können. Es wird erstmals ein Prozess beschrieben, bei dem das getunnelte Elektron im Laserfeld nicht genügend Driftenergie erhält, um dem ionischen Potential zu entkommen. Stattdessen wird es vom Ion wieder eingefangen und behält einen Teil der Energie aus der Beschleunigung durch das elektrische Feld als Anregungsenergie des besetzten Zustands. Dieser Prozess, welcher im Verlauf der Dissertation den Namen *Unterdrückte Tunnelionisation (Frustrated Tunneling Ionization, FTI)* erhalten hat, ergänzt die Reihe an Sekundärprozessen zur Tunnelionisation NSMI, ATI und HHG. Im Gegensatz zu den bisherigen Erklärungsansätzen zu angeregten Zuständen über eine Multiphotonenanregung durch einen intensiven Laserpuls stellt das neue Modell der FTI in Verbindung mit den übrigen Sekundärprozessen ein konsistentes Bild der Elektronendynamik im Tunnelregime zur Verfügung.
Der Schwerpunkt der Experimente liegt in dieser Arbeit auf den Edelgasen. Da der Prozess der Anregung mit der Tunnelionisation zusammenhängt und das physikalische Modell hieraus abgeleitet wird, enthält das zweite Kapitel eine kurze Übersicht über die Ionisationsdynamik in starken Laserfeldern.
In Kapitel 3 wird zunächst die Messapparatur detailliert beschrieben und charakterisiert. Dabei wird auf die Nachweismethode von angeregten neutralen Atomen eingegangen. Aufgrund ihrer internen Anregungsenergie von mehreren Elektronenvolt (20eV für die metastabilen Zustände von Helium) ist der experimentelle Nachweis mit einem MCP-Detektor (*Micro Channel Plate*) allerdings direkt möglich, da die angeregten Atome ihre Anregungsenergie beim Auftreffen auf den Detektor abgeben. Die verwendete Apparatur besteht aus einer Gasdüse, einer Wechselwirkungszone und dem MCP-Detektor, welcher eine ortsauflösende Anode besitzt. Charakterisiert werden die Strahleigenschaften der Düse, die Abbildungsgeometrie und die Geschwindigkeitsverteilungen für verschiedene Edelgase. Alle Experimente wurden mit Ultrakurzpulslasern (Pulsdauer 40fs) durchgeführt, die Intensitäten im Fokus liegen zwischen 10^{14} und $10^{16}\,W/cm^2$.
Die Verteilung der angeregten neutralen Atome auf dem Detektor ist für jedes Gas charakteristisch und enthält zudem eine Abbildung des anregenden Laserpulses. An Argon wird diese räumliche Verteilung der angeregten Atome nach dem Laserpuls im Strahl ausgewertet und ein Zusammenhang mit der Intensitätsverteilung in einem gaußförmigen Laserprofil hergestellt.
Zur Entwicklung des physikalischen Modells wird die Besetzungsverteilung der Rydbergzustände an den Edelgasen Argon, Xenon und Krypton und auch die Detektionseffizienz

von neutralen Atomen untersucht, da die Lebensdauer der Rydbergzustände durch lange Flugzeiten zwischen Anregung und Detektion die Lebensdauer der Rydbergzustände einen großen Einfluss auf die Anzahl detektierter Atome hat. Diese Edelgasatome sind jedoch zu komplex, um quantenmechanisch berechnet werden zu können.
Die Messungen im vierten Kapitel konzentrieren sich daher auf Helium, welches als Mehrteilchensystem mit vertretbarem numerischen Aufwand näherungsweise berechenbar ist. Das Modell, das im Rahmen der Dissertation entwickelt wird, orientiert sich am semiklassischen Rückstreumodell, obwohl der eigentliche Prozess kein Streuprozess ist. Es verbindet die Tunnelraten mit einer klassischen Elektronentrajektorienrechnung. Mittels Monte-Carlo-Simulationen an den Bewegungsgleichungen des Elektrons werden einige grundsätzliche Eigenschaften des FTI-Prozesses berechnet, zum Beispiel die messbaren Ausbeuten an angeregten Atomen im Vergleich zu den Ionisationsraten bei verschiedenen Laserintensitäten und der Parameterraum der Elektronen, die von Atomen eingefangen werden können. Abschließend findet ein Vergleich des semiklassischen Modells mit einer voll quantenmechanischen Rechnung statt, welche von *A. Saenz (Humboldt-Universität zu Berlin)* durchgeführt wurde.
Durch die hohe Empfindlichkeit neutraler Atome auf kleinste Impulsänderungen konnte in dieser Arbeit erstmalig eine Beschleunigung neutraler Atome in stärksten fokussierten Laserfeldern nachgewiesen werden, obwohl die auftretenden Intensitäten jenseits der Ionisationsschwelle der Atome liegen. Die Beschleunigung wird im Allgemeinen auf den Einfluss der Dipolkraft zurückgeführt, die über die statische Polarisierbarkeit der Elektronenhülle auf das Atom wirkt. Diese Kraft wird in einem kontinuierlichen Laserfeld zur Speicherung von einzelnen Atomen in Dipolfallen [11] oder auch makroskopischen Objekten im Laserfokus angewendet (*Optical Tweezer*), bei Fokussierung eines Lasers mit ns-Pulsdauer in Xenon- und Molekülgase kann die Dipolkraft die Atome abbremsen (*Optical Stark Decelerator* [12, 13]). Die so erreichten Beschleunigungswerte betragen das 10^9-fache der Erdbeschleunigung. Im fünften Kapitel dieser Arbeit wird erstmals ein Effekt untersucht, der zu einer 10^{14}-fachen Erdbeschleunigung von Helium- und Neonatomen durch einen intensiven Laserpuls führt. Diese kann nicht mit einer Wirkung der statischen Polarisierbarkeit in der Dipolkraft erklärt werden, da die Polarisierbarkeit des Heliumatoms im Grundzustand nicht die gemessenen Geschwindigkeitswerte verursachen kann.
Es wird daher ein anderer Ansatz gewählt, bei dem die Beschleunigung durch die ponderomotorische Kraft verursacht wird. Geladene Partikel können durch ein oszillierendes elektrisches Feld, welches die ponderomotorische Kraft verursacht, beschleunigt werden. Anwendung findet diese Kraft beispielsweise in Paulfallen [14, 15], der laserbasierten Elektronenbeschleunigung [16, 17, 18] oder dem Nachweis des Kapitza-Dirac-Effekts [19] (bei Elektronen [20]). Neutrale Atome erfahren eine Beschleunigung durch Wirkung der ponderomotorischen Kraft auf das Elektron, falls dieses durch den FTI-Prozess nach der Laserwechselwirkung weiterhin an das Atom gebunden ist. Dadurch wird der Kern vom Elektron mitgezogen, das Atom bleibt neutral und wird ebenfalls beschleunigt.

Im sechsten Kapitel wird erstmals ein weiterer Kanal bei der Starkfelddissoziation von Wasserstoff- und Stickstoffmolekülen nachgewiesen, bei dem neutrale angeregte Fragmente detektiert werden. Rückstreuprozesse sind auch bei Molekülgasen nachgewiesen worden ([21, 22]), so dass die Entstehung der neutralen Fragmente dem FTI-Prozess zugeordnet werden kann. Besitzen diese langlebige metastabile Zustände mit genügend hoher Anregungsenergie, ist ein Nachweis von neutralen Molekülen oder deren Fragmente möglich, was an den homonuklearen Molekülen Wasserstoff und Stickstoff untersucht wird. Da die Ionenspektren einer Moleküldissoziation durch intensive Laserpulse bei H_2 und N_2 bekannt sind (z. B. aus [23, 24, 25]), bieten diese einen Ansatzpunkt zum Verständnis der Spektren der neutralen Fragmente. Diese zeigen Analogien zu den Ionenspektren und lassen damit die Identifikation der neuen Dissoziationskanäle zu, bei denen ein Molekülfragment einen angeregten Zustand besetzt. Des Weiteren wird für das Wasserstoffmolekül das semiklassische Modell für das Heliumatom um einen Dissoziationsanteil erweitert, Simulationen durchgeführt und mit den gemessenen Spektren verglichen. Sowohl in Wasserstoff als auch Stickstoff werden neutrale Fragmente gemessen die durch den FTI-Prozess nach der Dissoziation durch Coulombexplosion oder Bond-Softening entstehen.
Das FTI-Modell behandelt einen Effekt, der universell bei Atomen und Molekülen auftritt und noch bislang nicht diskutiert wurde. Die unterdrückte Tunnelionisation von Atomen in starken Laserfeldern bietet nicht nur interessante neue Erkenntnisse zu den grundlegenden Laser-Materie-Wechselwirkungsmechanismen, sondern auch einige neue Diagnosewerkzeuge zur Charakterisierung und Intensitätsbestimmung intensiver Laserpulse wie beispielsweise die ortsaufgelösten Projektionen neutraler Atome auf die Detektoroberfläche. Diese Möglichkeiten sowie eine Zusammenfassung aller Ergebnisse dieser Arbeit werden im letzten Kapitel erörtert.

2 Atome in starken Laserfeldern

Dieses Kapitel gibt einen Überblick über die Wechselwirkung von Atomen mit starken Laserfeldern. Insbesondere wird auf das Tunnel- und Rückstreumodell nach P. Corkum [10], welches die theoretische Grundlage dieser Arbeit ist, näher eingegangen.

2.1 Grundlagen der Licht-Materie-Wechselwirkung

Die Wechselwirkung zwischen einem geladenen Teilchen und einem klassischen elektromagnetischen Feld wird durch die Lösungen der zeitabhängigen Schrödingergleichung

$$\begin{aligned} i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\vec{r},t) &= H\ \Psi(\vec{r},t) \\ H &= \frac{1}{2}\left(\vec{p}+\frac{1}{c}\vec{A}(\vec{r},t)\right)^2 - \phi(\vec{r},t) + V(r) \end{aligned} \tag{2.1}$$

beschrieben. Zur Vereinfachung wird die Dipolnäherung angenommen: Das Feld sei räumlich konstant und das Vektorpotential damit ortsunabhängig. Die Potentiale $\vec{A}$ und ϕ sind im Gegensatz zu den dazugehörigen Feldern $\vec{F}$ und $\vec{B}$ nur bis auf eine Eichfunktion f bestimmt, da sich die Felder nach den Maxwellgleichungen aus den Ableitungen der Potentiale berechnen:

$$\begin{aligned} \vec{A}' &= \vec{A} + \vec{\nabla} f \\ \phi' &= \phi - \frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t} f \end{aligned} \tag{2.2}$$

Die Wahl von f hängt von der physikalischen Problemstellung ab und wird als Eichtransformation bezeichnet. Die Wellenfunktion muss entsprechend mittransformiert werden: $\Psi' = Exp\left[-(i/c)\cdot f\right]\Psi$. In der Dipolnäherung wird das elektromagnetische Feld des Lasers als räumlich konstant angenommen. Dies ist für solche Felder in guter Näherung gegeben, bei denen die Wellenlänge λ viel größer ist als die Ausdehnung des Atoms. Die Potentiale können dann so gewählt werden, dass entweder das Vektorpotential A oder das skalare Potential ϕ verschwindet. Bei ortsunabhängigem Vektorpotential verschwindet mit $\vec{B} = \nabla \times \vec{A}$ auch das Magnetfeld, die Dipolnäherung eliminiert damit den magnetischen Anteil des elektromagnetischen Feldes.

Längeneichung

Vernachlässigt man also bei $\vec{A}(\vec{r},t)$ die Ortsabhängigkeit ($\vec{A} = \vec{A_0}\, cos\, \omega t$) und setzt f zu $f = -\vec{A_0} \cdot \vec{r}\, cos\, \omega t$, ergibt sich aus 2.2:

$$\begin{aligned} \vec{A'} &= \vec{A} - \nabla(\vec{A_0} \cdot \vec{r})\, cos\, \omega t = 0 \\ \phi' &= \frac{\omega}{c} \vec{A_0} \cdot \vec{r}\, sin\, \omega t \end{aligned} \tag{2.3}$$

Diese Eichtransformation wird Längeneichung genannt und ergibt mit $F_0 = -\frac{\omega}{c} A_0$ und der Annahme, dass das System rotationssymmetrisch sei ($\vec{A_0} \cdot \vec{r} = A_0\, z$), folgenden Hamiltonoperator

$$H = \frac{1}{2}\vec{p}^{\,2} - \phi(\vec{r},t) + V(\vec{r}) \tag{2.4}$$

mit

$$\phi = -F_0\, z\, sin\, \omega t \tag{2.5}$$

Die Längeneichung hat den Vorteil, dass der Impuls $\vec{p}$ dem kinematischen Impuls des Elektrons entspricht, der auch im Experiment gemessen wird. Das Potential ϕ ist ein reelles Potential, welches eine anschauliche Darstellung des atomaren Potentials in einem Laserfeld bietet. Diese Darstellung ist das Tunnelmodell und wird später separat diskutiert.

Geschwindigkeitseichung

Bei einer anderen Transformationsfunktion, der Geschwindigkeitseichung, verschwindet nicht das Vektorpotential, sondern das skalare Potential $\phi = 0$.

$$\begin{aligned} f &= -\frac{1}{2c} \int_0^{t_{max}} dt A^2(t) \\ H &= \frac{1}{2}\vec{p}^{\,2} + \frac{\vec{A} \cdot \vec{p}}{c} + V(r) \\ \vec{A} &= -c \int dt F_0\, sin\, \omega t \end{aligned} \tag{2.6}$$

Dies hat bei numerischen Lösungsverfahren den Vorteil, den notwendigen Rechenaufwand erheblich zu reduzieren, das Potential ist hier allerdings nicht mehr anschaulich darstellbar. Die Lösung der Schrödingergleichung in der Geschwindigkeitseichung ergibt das Bild der Multiphotonenionisation.

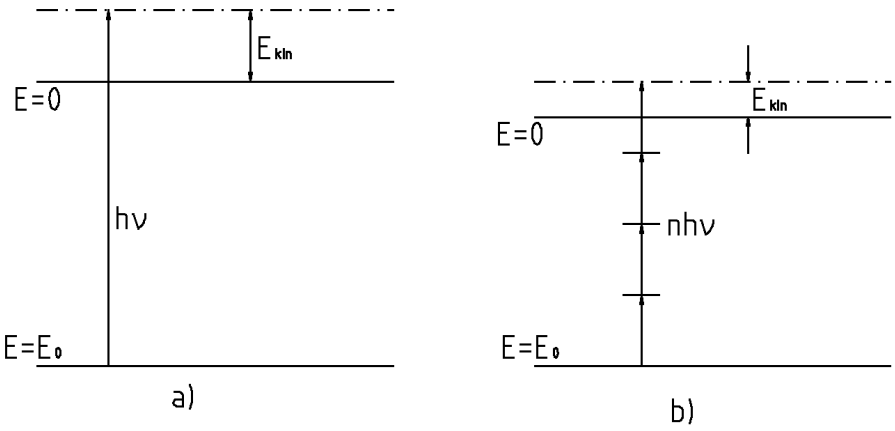

Abbildung 2.1: Ein- und Multiphotonenionisation

2.1.1 Multiphotonenionisation

Absorbiert ein Atom ein Photon mit einer Energie $\hbar\omega$, die größer ist als die Bindungsenergie E_b des Leuchtelektrons, wird dieses entfernt und erhält die kinetische Energie

$$E_{kin} = \hbar\omega - E_b \tag{2.7}$$

Im Gegensatz zu dieser Einphotonenionisation ist bei der *Multiphotonenionisation (MPI)* die Photonenenergie geringer als die Bindungsenergie, so dass mehrere Photonen notwendig sind, um das Atom zu ionisieren:

$$E_{kin} = n\hbar\omega - E_b \tag{2.8}$$

Dabei müssen analog zur Mehrphotonenabsorption hinreichend viele Photonen pro Fläche und Zeitintervall zur Verfügung stehen, um das Atom über mehrere virtuelle Zwischenzustände, die nur innerhalb der Energie-Zeit-Unschärfe existieren, zu ionisieren. Die MPI wird bei kleinen Intensitäten ($I < 10^{13} W/cm^2$) in guter Näherung durch die Störungstheorie in erster Ordnung beschrieben ([26], [27]) und 1965 erstmals von Voronov und Delone an Xenon beobachtet ([28]). In der Störungstheorie wird dem ungestörten System (Atom) eine Störung (Elektromagnetisches Feld) hinzugefügt, die das Übergangsmatrixelement $W_{i\to f}$ für den Übergang des Atoms zwischen zwei Zuständen Ψ_i und Ψ_f durch Absorption eines Photons enthält. Durch Verwendung der Geschwindigkeitseichung 2.6 lässt sich das Matrixelement als Multiphotonenabsorption darstellen, was in [29] ausführlicher beschrieben ist.

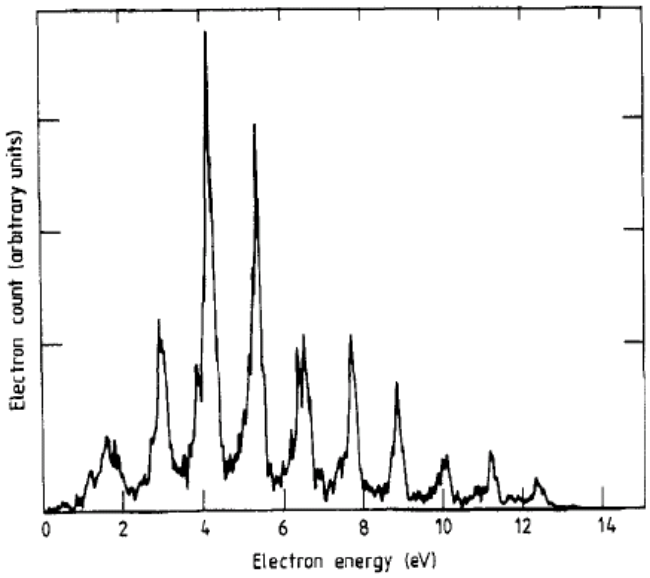

Abbildung 2.2: ATI-Photoelektronenspektrum aus [30] bei einer Intensität von $I = 1.1 \times 10^{13}\ W/cm^2$

Die Ionisationsrate einer N-Photonen-Ionisation ergibt sich aus der Störungstheorie zu

$$\omega_N = \sigma_N I^N \tag{2.9}$$

wobei σ_N der generalisierte Wirkungsquerschnitt und I die Lichtintensität ist. Bei höheren Intensitäten kommt es zur *Ionisation oberhalb der Schwelle (Above Threshold Ionization, ATI)*, bei der das Atom mehr Photonen absorbiert als zur Ionisation notwendig gewesen wäre. Zuerst ebenfalls an Xenon beobachtet [1], ergibt sich ein Photoelektronenspektrum wie in Abb. 2.2. Während sich die ATI-Spektren für niedrige Intensitäten noch mit einem störungstheoretischen Ansatz erklären lassen, versagt dieser bei höheren Intensitäten (Abb. 2.2), bei denen eine zusätzliche Energie U_p zur Ionisation des Atoms notwendig ist

$$U_p = \frac{q^2 E_0^2}{4m\omega_L^2} \ . \tag{2.10}$$

Dieser Anteil wird ponderomotorisches Potential genannt und beschreibt die mittlere Energie, die ein freies Elektron durch eine oszillierende Bewegung im Laserfeld (Amplitude E_0, Frequenz ω_L) aufnimmt. Entsprechend ist die Ionisationsenergie um U_p höher:

$$E_{kin} = (N + s)\hbar\omega_L - (E_b + U_p) \tag{2.11}$$

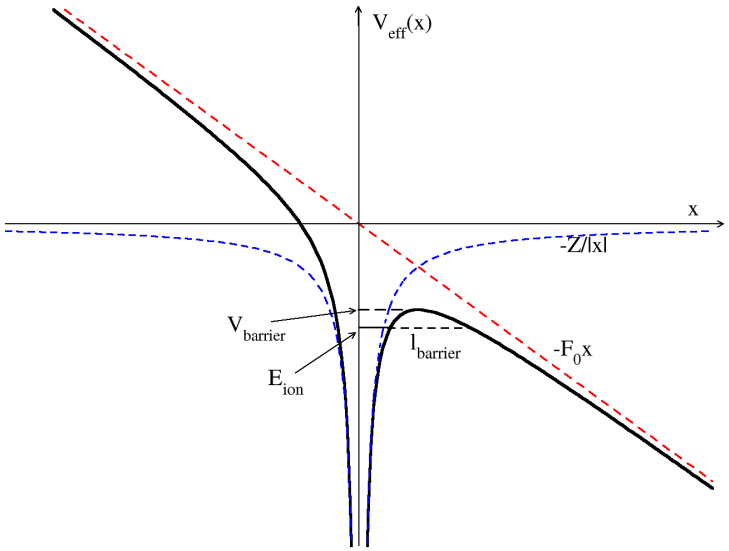

Abbildung 2.3: Tunnelionisation durch effektives Potential V_{eff} (schwarze Kurve) aus Coulombpotential und Laserfeld

Bei langen Laserpulsen ($>$ 10ps) kann das Elektron die ponderomotorische Energie der oszillierenden Bewegung vollständig in kinetische Energie (2.8) umsetzen, ist der Puls jedoch kürzer, bewegt sich das Elektron nach der Ionisation nur wenig während des Pulses. Der Energieübertrag auf das Elektron ist damit geringer, wodurch die um U_p erhöhte Ionisationsenergie in 2.11 eingeht.

2.1.2 Tunnelionisation

Bei hohen Laserintensitäten ($I > 10^{14} W/cm^2$) liefert eine störungstheoretische Rechnung der Licht-Materie-Wechselwirkung keine korrekten Ergebnisse, da die elektrische Feldstärke des Laserpulses keine kleine Störung mehr darstellt. Hier lässt sich das Modell der *Tunnelionisation* anwenden, das von L.V. Keldysh 1965 eingeführt wurde [5] und sich aus der Längeneichung der elektromagnetischen Potentiale (Gl. 2.3) ableiten lässt. Dabei wird das Coulombpotential des Atoms durch das elektrische Feld des Laserpulses F_0 so stark verzerrt, dass ein eigentlich gebundenes Elektron gemäß der Quantenmechanik mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit die entstehende Barriere durchtunneln kann (Abb. 2.3). Dieses Tunnelbild ergibt sich, wenn die zeitabhängige Schrödingergleichung in der Längeneichung dargestellt wird (Gl. 2.3). Dann ist das skalare Potential gegeben durch

Gleichung 2.5, aus der sich das effektive atomare Potential in Abb. 2.3 ergibt:

$$V_{eff}(x) = -\frac{Z}{x} - F_0 x \tag{2.12}$$

Sowohl Laser- als auch Coulombpotential werden also durch skalare Felder dargestellt. Breite und Höhe der Barriere sind mit der Bindungsenergie des Elektrons verknüpft:

$$\begin{aligned} l_{barrier} &= \frac{\sqrt{E_b^2 - 4ZF_0}}{F_0} \\ V_{barrier} &= -\sqrt{4ZF_0} \end{aligned} \tag{2.13}$$

Eine Abgrenzung zwischen dem Bereich des Tunnelmodells und dem Bereich des Multiphotonenbildes wird durch den Keldyshparameter [5] gegeben (in atomaren Einheiten).

$$\gamma = \omega_L \sqrt{2E_b}/F_0 \tag{2.14}$$

Falls $\gamma << 1$ ist, beschreibt das Tunnelmodell den zu untersuchenden Prozess, bei $\gamma >> 1$ ist das Multiphotonenbild angemessen. Die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wurden mit einem Ti:Sa-Lasersystem ($\lambda = 800nm$) an Edelgasen durchgeführt, bei Helium ($E_b = 0.9$ a.u.) beispielsweise ist mit $\omega_L = 0.056\, a.u.$ der Keldyshparameter $\gamma = 0.37$. Für Helium wird daher das Tunnelmodell zur Beschreibung der untersuchten Prozesse herangezogen. Bei Xenon, welches von den Edelgasen die geringste Bindungsenergie ($E_b = 0.45$ a.u.) hat, liegt der Keldyshparameter mit $\gamma = 1.05$ im Übergangsbereich zwischen Tunnelbild und Multiphotonenbild.
Das Tunnelmodell ist ein anschauliches Modell, das nur durch Wahl der Längeneichung entsteht. Die Geschwindigkeitseichung hingegen ergibt keine bildhafte Vorstellung von einem deformierten Coulombpotential. Aufgrund dieser Eichtransformationsabhängigkeit und der Voraussetzung der Dipolnäherung wird das Tunnelmodell als Erklärungsansatz mitunter kritisch betrachtet [31]. Insbesondere die Vernachlässigung des Magnetfeldes wird hier nicht als gültige Näherung angesehen. Die in dieser Arbeit auftretenden Laserintensitäten überschreiten $10^{16}\, W/cm^2$ jedoch nicht, das B-Feld hat keinen signifikanten Einfluss auf die hier betrachteten physikalischen Prozesse.

2.1.3 Ionisationsraten

Bei experimentellen Untersuchungen der Ionisationsdynamik von Atomen werden Ionenausbeuten in Abhängigkeit von der Laserintensität gemessen; daher ist es notwendig, auch für das Tunnelmodell Ionisationsraten berechnen zu können. Eine entsprechende Theorie wurde zunächst nur für einen gebundenen Zustand im oszillierenden elektrischen Feld von Perelomov, Popov und Terentev entwickelt [7] (PPT-Theorie) und 1986 von Ammosov, Delone und Krainov auf komplexe Atome erweitert [6]. Diese im folgenden als ADK-

Theorie bezeichnete Formel gibt die Tunnelrate ω_{ADK} für ein Elektron im atomaren Coulombpotential an, wobei sich das Atom in einem linear polarisierten Laserfeld $\vec{E} = F_0\vec{e_z} \cdot cos(\omega_L t)$ befinde. Dabei wird über die Oszillation des Laserpulses gemittelt, was nach Integration einen Faktor von $\left((3F_0)/(\pi(2E_b)^{3/2})\right)^{1/2}$ ergibt. Dieser Faktor unterscheidet die Ionisationsraten im statischen Feld von den Raten im Wechselfeld:

$$\begin{aligned}
\omega_{\text{adk}} &= E_b|C_{n^*l^*}|^2 f_{lm} \exp\left(-\frac{2(2E_b)^{3/2}}{3F_0}\right)\left(\frac{2(2E_b)^{3/2}}{F_0}\right)^{2n^*-|m|-1}\left(\frac{3F_0}{\pi(2E_b)^{3/2}}\right)^{1/2} \\
|C_{n^*l^*}|^2 &= 2^{2n^*}\left[n^*\Gamma(N^+ + l^* + 1)\Gamma(n^* - l^*)\right]^{-1} \\
f_{lm} &= \frac{(2l+1)(l+|m|)!(2^{-|m|})}{|m|!(l-|m|)!}
\end{aligned} \tag{2.15}$$

Der Vorfaktor $C_{n^*l^*}$ verallgemeinert mit den effektiven Quantenzahlen $n^* = \frac{Z}{\sqrt{2E_b}}$ und $l^* = n^* - 1$ die ADK-Formel von Wasserstoff zu komplexeren Atomen.
Bei einem zirkular polarisiertem Laserpuls ist das elektrische Feld gegeben durch

$$\vec{E} = F_0(\vec{e_x}cos(\omega_L t) \pm \epsilon\vec{e_y}sin(\omega_L t)) \tag{2.16}$$

wobei die Elliptizität $\epsilon = 1$ für den zirkularen Fall ist. Die Ionisationsrate ist nach [7] gegeben durch

$$\omega_{circ} = \left(\frac{3F_0}{\pi(2E_b)^{3/2}}\right)^{-1/2}\omega_{ADK} \tag{2.17}$$

Im Gegensatz zu linear polarisiertem Licht, wo die Rate über eine Schwingungsperiode gemittelt wird, entspricht die ADK-Rate der Ionisationsrate in einem statischen Feld. Das Elektron kann zu jeder Zeit aus dem atomaren Potential tunneln, die Ionisationsraten sind für zirkulare Polarisation bei gleicher Intensität demnach größer als für lineare Polarisation. Bei beliebiger elliptischer Polarisation ist die Ionisationsrate nach [7] gegeben durch

$$\omega_{ellipt}(\epsilon) = \sqrt{\frac{\epsilon(1+\epsilon)}{2}}^{-1}\, a\left(\frac{(1-\epsilon)(2E_b)^{3/2}}{3\epsilon F_0}\right)\cdot\omega_{stat}(F_0) \tag{2.18}$$

mit $a(x) = e^{-x}I_0(x)$, $I_0(x)$ ist die modifizierte Besselfunktion der imaginären Zahlen. ω_{stat} bezeichnet die Ionisationsrate in einem statischen Feld ohne die Mittelung über die Oszillation.
Das ADK-Modell liefert für die Einfachionisation und sequentielle Mehrfachionisation Ergebnisse, die mit den experimentellen Daten dieser Prozesse übereinstimmen. Die Experimente zeigen aber noch andere Strukturen in der Ionenausbeute bei variabler Laserintensität, welche mit einem semiklassischen Modell beschrieben werden können. Dieses Modell wird im folgenden Abschnitt kurz erläutert.

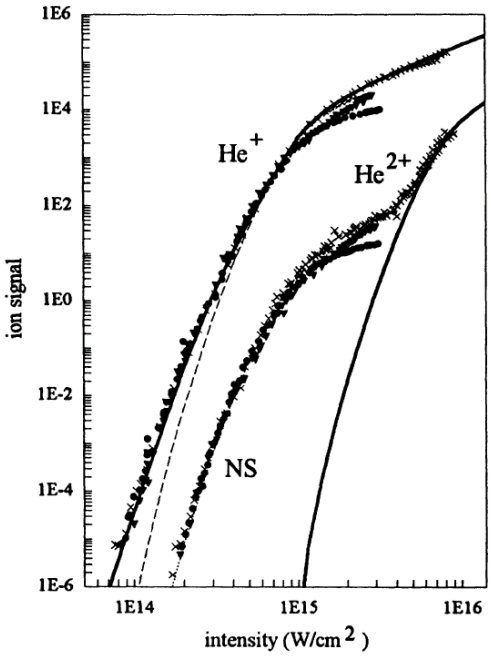

Abbildung 2.4: Gemessene Ionisationsraten von Helium und die errechneten ADK-Raten (durchgezogene Linie) (Quelle: [9])

2.2 Rückstreumodell und sekundäre Prozesse

Bisher wurde nur die Einfachionisation eines Atoms durch einen starken Laserpuls betrachtet. Man beobachtet jedoch bei der Ionisation in starken Laserfeldern eine Reihe von sekundären Effekten, die sich nicht allein aus den ADK-Raten ergeben. Beispielsweise untersuchten Walker et al. [9] die Mehrfachionisation von Helium und beobachteten eine Abweichung der Ionisationsraten doppelt geladenen Heliums von den errechneten ADK-Raten. (Abb.2.4). Die in der Messung vorhandene Kniestruktur ist charakteristisch für die *nichtsequentielle Doppelionisation (Nonsequential Double Ionization, NSDI)*. Des Weiteren wurde an allen Edelgasen die Erzeugung von hochenergetischen Photonen gezeigt [4], wobei ein intensiver Nd:Glas-Laserpuls (1053nm) auf einen Gasstrahl fokussiert wurde. Bei diesem Prozess, der *Erzeugung hoher Harmonischer (High Harmonic Generation, HHG)*, werden Photonenenergien von bis zu 160eV (bei Helium) freigesetzt; die gemessenen Energiespektren zeigen einen weiten Bereich von ungeradzahligen Vielfachen der Photonenenergie des verwendeten Lasers.

2.2.1 Das Rückstreumodell

Bei den oben erwähnten Prozessen, NSDI und HHG, handelt es sich um einen Streu- beziehungsweise Rekombinationsprozess des durch Tunnelionisation freigesetzten Elek-

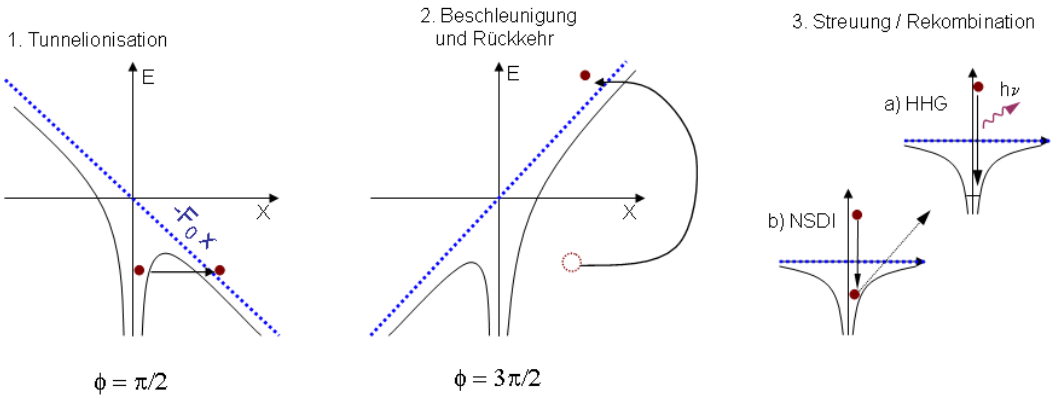

Abbildung 2.5: Skizze des dreistufigen Rückstreumodells nach P. Corkum [10].

trons, welches zum Ionenrumpf zurückgetrieben wird. Zur Deutung wird das Rückstreumodell [10] von P. Corkum herangezogen, ein semiklassisches Modell, welches die Ionisationsdynamik eines Atoms in einem intensiven ($I > 10^{14} W/cm^2$) Laserpuls beschreibt. Demnach durchläuft das Atom drei Stufen:

1. Ein Elektron wird durch Tunnelionisation freigesetzt; die Tunnelrate ist durch die ADK-Formel gegeben. Das Tunneln findet im zeitlichen Bereich der höchsten Feldstärke statt.

2. Die weitere Dynamik des Elektrons im Feld wird klassisch beschrieben. Das Elektron wechselwirkt mit dem elektrischen Feld des Lasers und wird vom Ion wegbeschleunigt. Dabei nimmt das Elektron kinetische Energie aus dem Laserfeld auf. Ändert sich die Richtung des Feldes (innerhalb eines halben Laserzyklus), ist eine Rückbeschleunigung des Elektrons zum Ion möglich.

3. Falls das Elektron zum Kern zurückkehrt, besteht die Möglichkeit einer Streuung am Ion und es kann auf verschiedene Weise seine Energie abgeben. Durch einen inelastischen Stoß wird ein weiteres Elektron freigesetzt und es liegt nichtsequentielle Doppelionisation vor. Rekombiniert das Elektron mit dem Ion in den Grundzustand, gibt es die im Laserfeld gewonnene kinetische Energie als Photon ab. Dieser Prozess führt zur Erzeugung hoher Harmonischer.

Diese Effekte treten alle gleichzeitig mit bestimmten Wahrscheinlichkeiten auf. Die Energie, die die Elektronen nach der Beschleunigung haben, hängt von der Phase des Laserpulses zum Zeitpunkt des Tunnelns t_0 ab. Das Elektron, dessen Geschwindigkeit nach dem Tunneln Null ist, wird durch die Lorentzkraft

$$\vec{F_L} = e(\vec{E} + \frac{1}{c}\vec{v} \times \vec{B}) \tag{2.19}$$

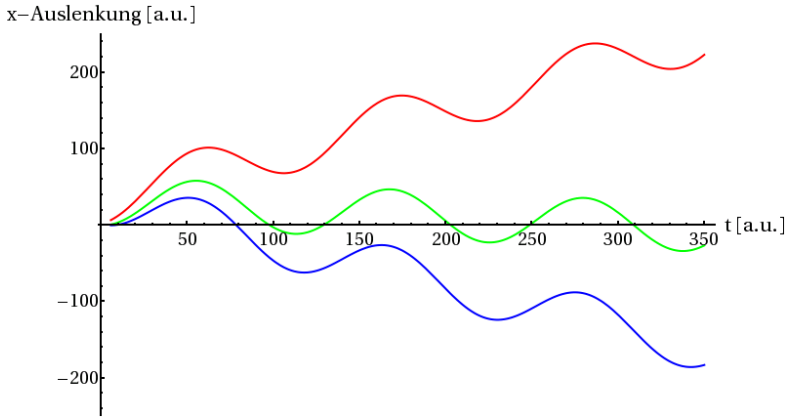

Abbildung 2.6: Elektronentrajektorien während einer Periode des elektrischen Feldes bei unterschiedlichen Ionisationszeiten: $\omega t_0 = -20°$(−), $\omega t_0 = 3°$ (−) und $\omega t_0 = 18°$ (−)

beschleunigt. Für den nichtrelativistischen Fall ($v << c$) ist das Magnetfeld $\vec{B}$ im Allgemeinen vernachlässigbar und die Bewegungsgleichung für das (freie) Elektron im linear polarisierten Laserfeld ist

$$\ddot{x}(t) = \frac{eF_0}{m_e} cos(\omega t) \tag{2.20}$$

Durch Integration von 2.20 erhält man die Trajektorien und die Geschwindigkeit des Elektrons:

$$\begin{aligned} \dot{x}(t) &= -\frac{eF_0}{m_e\omega}(sin(\omega t) - sin(\omega t_0)) \\ x(t) &= -\frac{eF_0}{m_e\omega^2}\left[(cos(\omega t) - cos(\omega t_0)) + \omega(t - t_0)sin(\omega t_0)\right] \end{aligned} \tag{2.21}$$

Man erkennt, dass die Phase des Laserpulses zum Tunnelzeitpunkt festlegt, wie oft und mit welcher Energie das Elektron zum Ion zurückbeschleunigt wird. Dies ist für drei Ionisationszeiten in Abbildung 2.6 dargestellt. Bei Ionisation vor dem Feldmaximum (−) kehrt das Elektron nicht zum Kern zurück, kurz nach dem Maximum (−) jedoch mehrfach. Die momentane kinetische Energie, die das Elektron dadurch in Kernnähe (x-Auslenkung = 0) hat, ist dabei minimal. Die maximale Energie von 3.14 U_p an dieser Position hat das Elektron bei einer Phase von $\omega t_0 = 108°$. Hier (−) wird das Elektron genau einmal zum Kern zurückgetrieben. Nach dem Laserpuls hat das Elektron letztendlich einen Energiebetrag T aus der Laserwechselwirkung aufgenommen

$$T = T_0 + 2U_p \cdot cos^2(\omega t_0) + 2\sqrt{2}\sqrt{U_p}\sqrt{T_0}\, cos(\omega t_0) \ . \tag{2.22}$$

Diese Gleichung erhält man mit $\frac{1}{2}\dot{x}^2$ in zeitlicher Mittelung aus (2.21). Dabei ist der letzte Term nur von Bedeutung, falls das Elektron eine Anfangsenergie T_0 besitzt, die einer Geschwindigkeit nach dem Tunneln in Richtung des Laserfeldes entspricht. Da dies die gesamte kinetische Energie ist, die das Elektron aus dem Wechselwirkungsprozess erhält, ist der Wert von T auch entscheidend für die auftretenden Sekundärprozesse.
Aufbauend auf den Grundlagen dieses Abschnitts wird in den folgenden Kapiteln die Bildung von angeregten Zuständen bei Edelgasen und Molekülgasen durch einen kurzen Laserpuls untersucht. Es folgt zunächst eine Beschreibung des Versuchsaufbaus, bevor auf die Messergebnisse eingegangen und die theoretische Beschreibung auf den Fall der Anregung erweitert wird.

3 Experimenteller Nachweis angeregter Atome

Der experimentelle Schwerpunkt dieser Dissertation liegt auf dem Nachweis von Atomen, die durch einen kurzen, intensiven Laserpuls in teilweise langlebige Rydbergzustände angeregt werden. Die Bildung solcher Zustände bei Wechselwirkung von Edelgasatomen mit intensiven Laserpulsen ist bereits seit längerem bekannt [32, 33, 34]. De Boer et al. konnten beispielsweise bei niedrigen Laserintensitäten ($I = 10^{13}\ W/cm^2$ angeregte Xenonatome ($n = 4 - 6$) mittels Pump-Probe-Messungen nachweisen [32], bei höheren Intensitäten ($I > 5 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$) beobachteten R.R. Jones et al. [33] auch hochangeregte Rydbergzustände ($n > 14$) sowohl bei neutralen Kryptonatomen als auch bei Kryptonionen. In beiden Fällen wurde zur Erklärung eine Multiphotonenanregung der Rydbergzustände durch bis zu 20 Photonen herangezogen, die allerdings nur qualitative Aspekte umfasst. Im Tunnelregime wurde die Anregung von Atomen bislang nicht beobachtet.
Im Gegensatz zu diesen Experimenten, bei denen die Rydbergzustände mittels Feldionisation nachgewiesen werden, erfolgt der Nachweis in den hier vorgestellten Experimenten direkt mit einem Micro-Channel-Plate (MCP)-Detektor. Ermöglicht wird dies durch zwei Eigenschaften der hochangeregten Atome: Zum einen beträgt die Anregungsenergie der besetzten Zustände mehr als 5eV, so dass diese vom MCP-Detektor erfasst werden können. Zum anderen haben die Zustände eine hinreichend große Lebensdauer und ein bestimmter Anteil der Atome erreicht auch in einem solchen angeregten Zustand den Detektor.
Im Folgenden werden zunächst die Nachweismethode und der experimentelle Aufbau beschrieben. Danach werden Messungen an verschiedenen Edelgasen vorgestellt und diskutiert. Insbesondere wird auf die Abbildungseigenschaften der Apparatur sowie den bereits erwähnten Einfluss der Lebensdauer der Rydbergatome eingegangen.

3.1 Detektionsverfahren zum direkten Nachweis

Bei der Erforschung von Prozessen, die aus der Wechselwirkung von Licht und Materie hervorgehen, insbesondere die Wechselwirkung von Atomen mit starken (Intensität $I > 10^{14}\ W/cm^2$) Laserfeldern, werden die Endprodukte des Prozesses detektiert und analysiert. Dies sind geladene Teilchen, Elektronen und Ionen, sowie Photonen im XUV-Bereich beim HHG-Prozess. Diese können alle mittels eines Micro-Channel-

Plates (MCP) nachgewiesen werden; der Nachweis beruht bei geladenen Teilchen auf einer gezielten Beschleunigung durch ein elektrisches Abzugsfeld auf die MCP-Detektorfläche. Durch den Einschlag der Teilchen mit hoher kinetischer Energie wird eine Elektronenlawine ausgelöst, verstärkt und als Spannungspuls auf der MCP-Anode detektiert. So können nicht nur die Ionen und Elektronen gezählt, sondern mit einer geeigneten ortsempfindlichen Anode sogar deren Position auf dem Detektor aufgezeichnet werden.
Bei neutralen Atomen ergibt sich jedoch das Nachweisproblem, dass diese nicht durch elektrische Felder auf die nötige kinetische Energie beschleunigt werden können. Ein Auslösen einer Elektronenlawine auf dem MCP ist somit nicht ohne weiteres möglich. Ist die Energie des Zustands eines angeregten Atoms jedoch hinreichend hoch (etwa 4-5 eV), werden auch neutrale Atome in einem solchen Zustand vom MCP detektiert, da das Atom durch den Stoß mit der ersten Detektorplatte des MCP seine Anregungsenergie abgibt. Auf diese Weise lassen sich solche neutralen Atome in angeregten Zuständen nachweisen, deren Energie und auch deren Lebensdauer groß genug ist, so dass sie den Detektor auch in einem angeregten Zustand erreichen. Dieses Verfahren ist bekannt (siehe [35]) und wurde beispielsweise von F. Penent et al. [36] angewandt, um Helium in metastabilen und Rydbergzuständen nachzuweisen. Bei magnetooptischen Fallen für metastabile Edelgase, beispielsweise Helium im metastabilen 1s2s-Zustand, werden die gefangenen metastabilen Atome ebenfalls mit einem MCP-Detektor nachgewiesen[37]. Im Zusammenhang mit Ionisationsdynamik in starken Laserfeldern wird diese Nachweismethode hier erstmals eingesetzt.

3.1.1 Vakuumapparatur und Messtechnik

Die für diese Arbeit verwendete Apparatur (Abb.: 3.1) enthält als Detektor ein ortsauflösendes MCP „DLD80“ (Hersteller: *Roentdek*) mit einer empfindlichen Fläche von $20cm^2$. Zwei Chevron-Platten von 8cm Durchmesser sind über einer so genannten *Delay-Line-Anode* montiert. Diese Anode besteht aus einem Geflecht aus zwei orthogonal zueinander aufgewickelten Kupferdrähten, an deren vier Enden (x1, x2, y1, y2) das Anodensignal abgegriffen werden kann. Vor der ersten Chevronplatte befindet sich in 1cm Abstand ein Goldnetz, welches permanent geerdet ist. Trifft eine Elektronenlawine aus den Platten auf eine Stelle der Anode, läuft ein elektrischer Puls von der Auftreffstelle zu den Drahtenden; aus den Laufzeitdifferenzen zwischen x1 und x2 (bzw. y1 und y2) wird dann elektronisch die Position des Teilcheneinschlages rekonstruiert. Die an die einzelnen Elektroden anzulegenden Hochspannungen variieren mit der zu detektierenden Teilchensorte (Ionen, Elektronen oder angeregte neutrale Atome). Für die Detektion neutraler Atome hat sich der Betrieb des MCP in einer modifizierten Elektronendetektionsschaltung bewährt. Dabei wird die vordere MCP-Platte (MCP-Front) auf ein negatives Potential von -200V gelegt, um Elektronen abzustoßen. Ionen werden zwar in Richtung MCP beschleunigt,

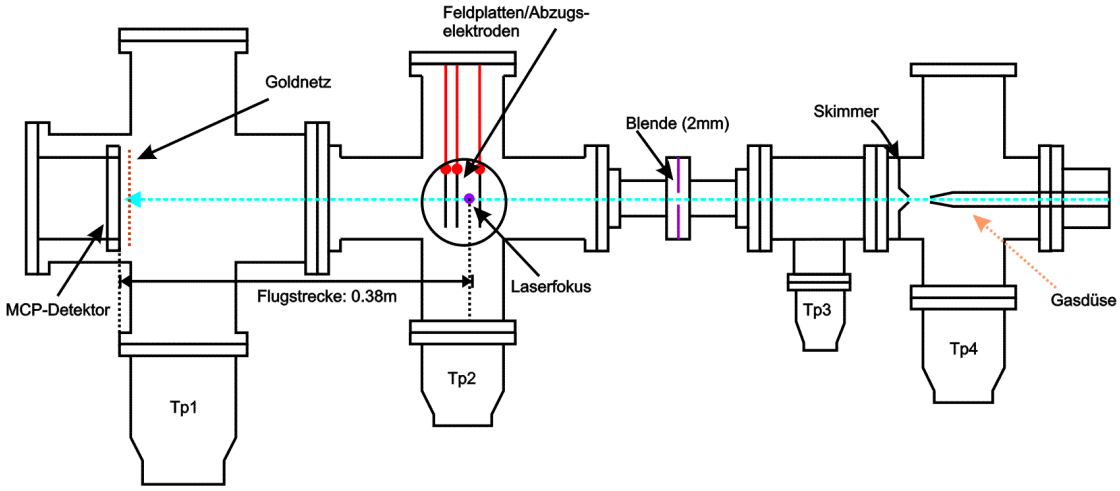

Abbildung 3.1: Aufbauskizze der Vakuumapparatur. TP1-4: Turbopumpen

erreichen aber nicht die notwendige kinetische Energie um eine Elektronenlawine auszulösen. Die hintere MCP-Platte (vor der Anode) erhält eine Spannung von 2kV, ebenso wie der Halter der Anodendrähte. Die Signal- und Referenzdrähte der Anode werden mit 50V Spannungsdifferenz auf 2.3 bzw. 2.25kV Hochspannung gegen Erde gelegt. Ein Schema des MCP-Detektor mit den anzulegenden Hochspannungen ist in Abb. 3.2a für neutrale Atome und in Abb. 3.2b für Ionen gezeigt. Dieses MCP ist in eine UHV-Kammer aus Edelstahl (Flanschtyp: ConFlat (CF)) eingebaut (siehe Abb. 3.1). Die UHV-Vakuumkammer besteht aus drei differentiell gepumpten Sektionen: die Düsenstrahlquelle (TP4), eine differentielle Pumpstufe (TP3) sowie die Wechselwirkungskammer mit anschließender Flugstrecke, an deren Ende der Detektor eingebaut ist (TP1 und 2). Als Pumpensystem kommen Turbomolekularpumpen der Hersteller Pfeiffer und Varian zum Einsatz, die mit einer Scrollpumpe (*Varian TriScroll*) evakuiert werden.

Düsenstrahlquelle

Die Gasstrahlquelle, in Abb. 3.1 rechts eingezeichnet, besteht aus einer Bornitridüse mit einem Öffnungsdurchmesser von $200\mu m$, die über eine Gasdurchführung außerhalb der Vakuumkammer mit einer Gasflasche verbunden ist. Mit einem Nadelventil lässt sich der Staudruck in der Düse einstellen. Zusammen mit einem Skimmer, der den Gasstrahl radial verkleinert, und einer Turbomolekuarpumpe (TP4) bildet sie die erste Pumpstufe. Die Quelle wurde aus einem früheren Experiment zur Kühlung und Speicherung von metastabilen Heliumatomen übernommen und bietet daher noch die Möglichkeiten, die Düse mit Flüssigstickstoff auf -150°C zu kühlen und eine Gasentladung in der

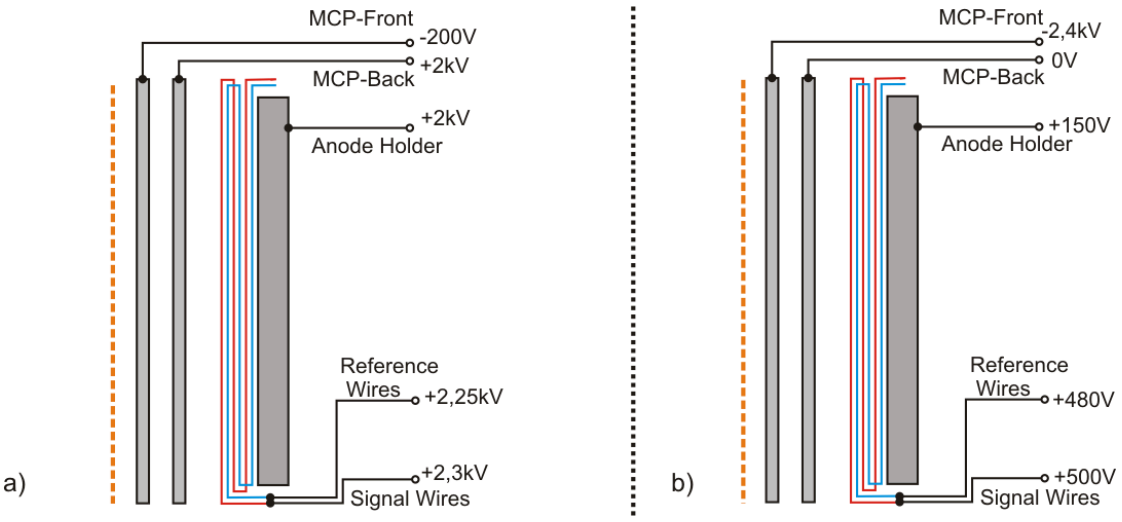

Abbildung 3.2: Spannungskonfigurationen für den MCP-Detektor a) für neutrale angeregte Atome und b) für Ionen

Bornitritdüse zu zünden. Eine genaue Beschreibung dieser Einheit ist in [38] und [39] zu finden.
Hinter dem Skimmer schließt sich eine differentielle Pumpstufe (TP3) von 23cm Länge an, die mit einer Blende von 2mm Durchmesser abgeschlossen wird. Die Blende war zunächst eine Kupferscheibe, die anstelle einer Kupferdichtung eingesetzt wurde; im weiteren Verlauf der Experimente wurde diese fest eingebaute Blende durch ein Schiebeventil der Firma VAT mit einer 2mm-Bohrung ersetzt. Dies hat bei den Vorteil, schnell die Blende entfernen zu können, um den gesamten divergenten Gasstrahl zu nutzen.

Wechselwirkungszone

Die Interaktionszone für den Laserstrahl befindet sich in einem UHV-Edelstahl-Kreuz über der Pumpe TP2. Laserstrahl und Gasstrahl kreuzen sich in der Mitte der Kammer rechtwinklig. Die Ein- und Auskopplung des Lasers erfolgt über zwei Glasfenster mit einer Dicke von 3mm. Da das Ziel der Messungen in Nachweis und Zählung von neutralen angeregten Atomen bestand, ist es notwendig, geladene Teilchen, die das Detektorsignal der neutralen Atome überlagern könnten, vom MCP-Detektor fernzuhalten. Insbesondere bei Messungen an Molekülgasen ist dies ein sehr kritischer Prozess, da neutrale Molekülfragmente durch das Laserfeld wesentlich höhere kinetische Energien erhalten als neutrale, angeregte Atome (siehe auch Kapitel 6). Je nach durchgeführtem Experiment kommen daher zwei unterschiedliche Elektrodentypen zum Einsatz: eine Elektrodenanordnung aus parallelen Platten in Wiley-McLaren-Konfiguration (Abb. 3.3b) und eine Anordnung

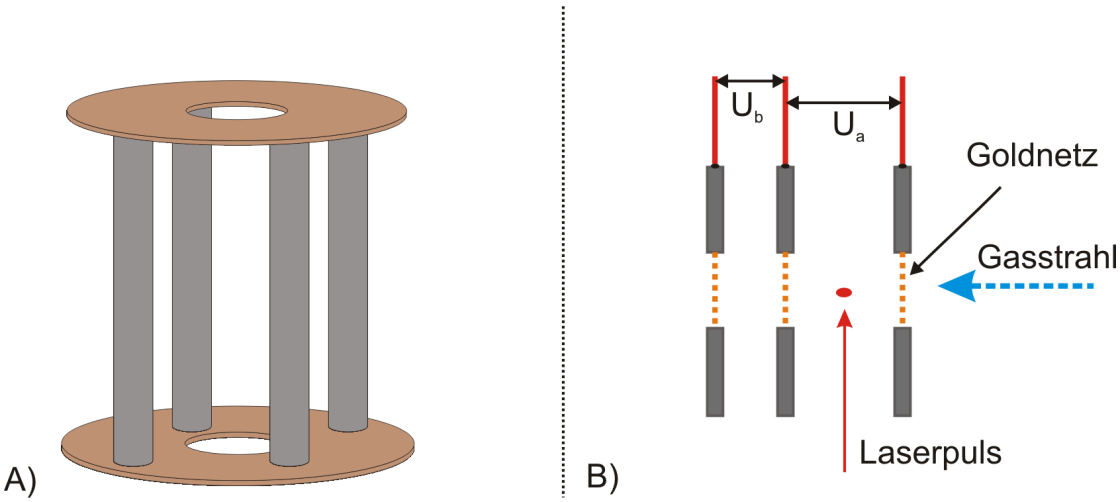

Abbildung 3.3: In den Experimenten verwendete Elektrodenanordnungen. a) Feldstäbe, Abstand der Stäbe: 25mm, b) Feldplatten in Wiley-McLaren-Anordnung

aus vier runden Edelstahlstäben (Durchmesser: 6mm), im weiteren "Feldstäbe"genannt (Abb. 3.3a). Die Feldstäbe werden senkrecht zur Laser- und Gasstrahlachse mittig in die Wechselwirkungszone gehängt; jeder der Stahlstäbe wird über eine Hochspannungs-Vakuumdurchführung entweder mit Erdpotential oder einer Spannungsquelle verbunden. Es wird an jeweils gegenüberliegende Stabpaare eine Spannung angelegt, so dass geladene Teilchen wahlweise in verschiedene Richtungen beschleunigt werden: Richtung Detektor, Richtung Gasdüse oder senkrecht zum Gasstrahl. Durch geeignete Wahl der Beschleunigungsspannung und -richtung können geladene Teilchen vom MCP-Detektor ferngehalten werden; eine Überlagerung des Signals der neutralen Atome wird damit weitgehend vermieden. Die Feldstäbe kamen in den Experimenten entsprechend immer dann zum Einsatz, wenn:

- eine Störung des Nachweises neutraler Atome oder Fragmente durch Ionen und Elektronen vermieden werden sollte
- das ortsaufgelöste Bild des Wechselwirkungsbereichs aufgenommen wurde.

Der Nachteil der Stäbe besteht jedoch in der inhomogenen Feldverteilung, die zwischen ihnen erzeugt wird. Die Feldstärke E im Zentrum der Elektrodenanordnung beträgt näherungsweise ein Drittel der angelegten Spannung U_{Feld} pro Zentimeter:

$$E = \frac{1}{3} \cdot U_{Feld}/[cm] \ . \tag{3.1}$$

Bei Messungen, die ein wohldefiniertes Abzugsfeld erfordern, zum Beispiel gleichzeitiger Nachweis von Ionen und neutralen angeregten Atomen oder Feldionisation der angeregten Zustände zur Bestimmung der Zustandsverteilung, wurde hier eine Anordnung aus drei parallelen Feldplatten verwendet, die einem Aufbau von W.C.Wiley und I.H. Mclaren [40] entsprechen. Alle drei Platten werden senkrecht zum Gasstrahl in die Wechselwirkungszone gehängt, sie haben daher ein mit Goldnetz überspanntes Loch von 3cm Durchmesser (Abb. 3.3b), durch das die Gasatome den Plattenstapel passieren. Die quellenseitigen beiden Platten haben einen Abstand von $a = 10\text{mm}$, die dritte Platte ist der mittleren um $b = 5\text{mm}$ vorgelagert. Mit diesen Abständen und den anzulegenden Feldern E_a und E_b lässt sich nach [40] der Ortsfokus s_c, definiert als die feldfreie Flugstrecke zwischen der letzten Platte und dem Detektor, bestimmen:

$$s_c = a\left(1+\frac{bE_b}{\frac{1}{2}aE_a}\right)^{3/2}\left(1-\frac{b}{\frac{a}{2}}\cdot\frac{1}{\left(1+\frac{bE_b}{\frac{1}{2}aE_a}\right)+\sqrt{\left(1+\frac{bE_b}{\frac{1}{2}aE_a}\right)}}\right) \tag{3.2}$$

Die Felder E_a und E_b müssen so gewählt werden, dass der Ortsfokus sich auf der Detektoroberfläche befindet. Der Abstand vom Laserfokus zum Detektor beträgt hier 38cm. Ist diese Bedingung erfüllt, erreichen alle erzeugten Ionen mit dem gleichen Masse-/Ladungsverhältnis gleichzeitig den Detektor, unabhängig davon, an welchem Punkt sie zwischen den hinteren beiden Feldplatten gestartet sind.

Datenerfassung und -aufbereitung

Der MCP-Detektor liefert, wie bereits erwähnt, pro Teilchenereignis vier Signale x1, x2, y1, y2 von der Delay-Line-Anode. Diese vier Signale sowie die Spannungspulse der beiden MCP-Platten werden in einer Steuereinheit DLA-TR6 der Firma Roentdek zunächst verstärkt und danach mittels eines Constant-Fraction-Diskriminators in logische Pulse nach ECL-Standard umgewandelt. Diese Daten können nun auf zwei unterschiedliche Weisen erfasst und verarbeitet werden.
Zur Aufnahme eines ortsaufgelösten Bildes der Teilchenverteilung auf dem Detektor werden die aufbereiteten Anodensignale in einen *Time-To-Digit-Converter(TDC)* (Roentdek AM-HM1) eingegeben. Dieser TDC hat eine Zeitauflösung von 150ps und ist in der Lage, die geringen Laufzeitunterschiede zwischen den Anodensignalen hinreichend gut aufzulösen. Die absolute Zeitinformation der Detektorereignisse geht dabei jedoch aufgrund einer technischen Beschränkung des HM1 verloren. Ein Steuerprogramm (Roentdek CoboldPC) errechnet dann aus den TDC-Daten das Ortsbild der gemessenen Verteilung. Des Weiteren wird ein Delay-/Gategenerator der Firma Stanford Research Systems (DG535) eingesetzt, um einen bestimmten Zeitabschnitt zur Datenaufnahme zu selektieren. Das Startsignal für den TDC wird zu diesem Zweck über eine Logikeinheit

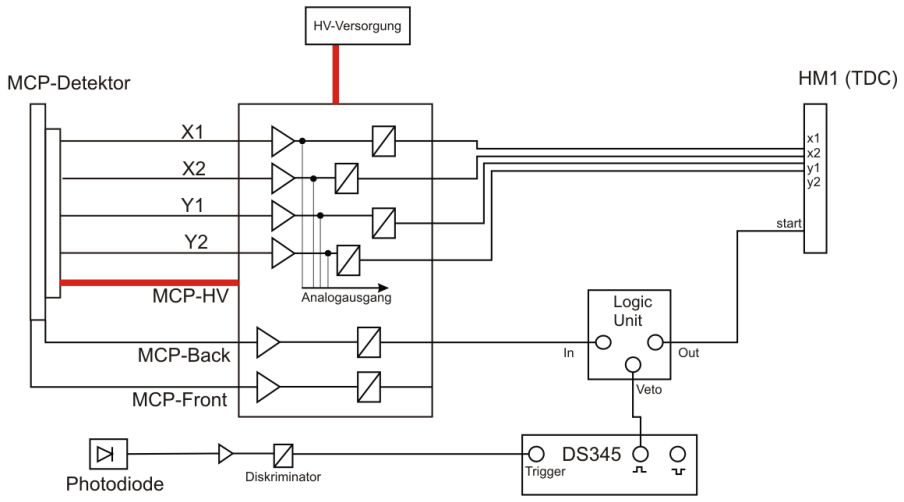

Abbildung 3.4: Schematische Darstellung der Datenerfassungselektronik für ortsaufgelöste Messungen

(Phillips Scientific PS755) geführt, die entsprechend der Einstellung des Delaygenerators nur Pulse innerhalb des gewählten Zeitfensters an den TDC weiterreicht. Abbildung 3.4 zeigt schematisch die elektronische Ausführung der Datenerfassung.
Die Erfassung von Flugzeitspektren erfolgt mittels eines 10-Bit-Vierkanal-Digitizers DC272 der Firma *Acqiris*. Dieser zeichnet, ähnlich einem digitalen Speicheroszilloskop, das analoge Signal eines Kanals mit maximal 232000 Punkten Auflösung auf; der Zeitbereich der Datenaufnahme wird mittels eines Sample-Intervalls festgelegt. Die Daten werden an einen Messrechner übertragen und vom Steuerprogramm ausgewertet. Da hier fast ausschließlich Logikpulse mit definierten Spannungspegeln aufgenommen wurden, schreibt das Steuerprogramm zur Datenmengenreduktion nur Datenpunkte im Bereich eines logischen Pulses mit. Mit einem weiteren Analyseprogramm können diese Rohdaten in Histogramme mit der gewünschten Kanalbreite umgewandelt werden. Alle Geräte in den vorgestellten Experimenten, die ein Startsignal relativ zum Laserpuls benötigen, werden durch eine Photodiode (BPX66) mit einem Triggersignal versorgt. Die Photodiode misst dabei einen diffusen Reflex des Laserpulses von einem optischen Element.

Lasersysteme

Alle Messungen dieser Arbeit sind mit ultrakurzen Laserpulsen im fs-Bereich ($1fs = 10^{-15}s$) bei einer Wellenlänge von 800nm (zum Teil auch mit der 2. Harmonischen) durchgeführt worden. Diese Pulse wurden von verschiedenen Lasersystemen erzeugt:

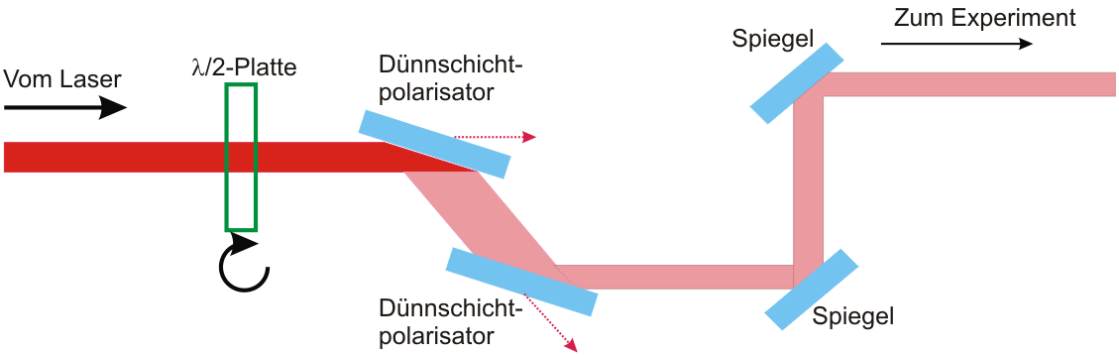

Abbildung 3.5: Aufbau des Strahlabschwächers mit zwei Dünnschichtpolarisatoren (Ansicht von oben)

- ein fs-Lasersystem mit 10Hz Repetitionsrate, einer mittleren Pulsdauer von $\tau_F = 45$fs und einer Pulsenergie von max. 5mJ (Eigenbau [41])
- ein kommerzielles Lasersystem von Spectra Physics mit 700Hz Repetitionsrate, $\tau_F = 40$fs und einer Pulsenergie von max. 1,5mJ (Oszillator SP-Tsunami, Verstärker SP-Spitfire)
- ein weiteres kommerzielles System von Spectra Physics, jedoch mit variabler Repetitionsrate von bis zu 1kHz und einer maximalen Pulsenergie von 2,4mJ

Alle drei Lasersysteme arbeiten nach dem Prinzip der *Chirped-Pulse-Amplification (CPA)* [42, 43]: Ein Masteroszillator liefert mittels passiver Modenkopplung (Kerr-Lens-Modelocking) einige fs lange Pulse im nJ-Energiebereich und einer Wiederholrate von etwa 80MHz. Diese Pulse werden mittels eines Gitter- oder Prismen-Stretchers zeitlich auf Pikosekundenlänge gestreckt und dann in einer oder mehreren Verstärkerstufen (regenerativ oder mehrfachdurchlaufend) auf einige mJ verstärkt. Nach der Verstärkung wird die zeitliche Streckung durch einen Gitter- oder Prismenkompressor wieder rückgängig gemacht. Auf die genaue Funktionsweise der Ultrakurzpulserzeugung soll jedoch nicht weiter eingegangen werden, es sei an dieser Stelle auf die oben genannte Literatur verwiesen. Da selten die volle Pulsenergie genutzt wird, muss der Laserstrahl vor dem Eintritt in die Vakuumanlage abgeschwächt werden. Dazu eignet sich am besten ein optischer Aufbau, bei dem die Abschwächung in Reflexion geschieht. Abbildung 3.5 zeigt den hier verwendeten Strahlabschwächer: Der Laserstrahl passiert zunächst eine drehbare Halbwellenplatte nullter Ordnung (das einzige transmittive Element), mit welcher die Polarisationsebene des Pulses eingestellt wird. Halbwellenplatten (auch $\lambda/2$-Platten genannt) bestehen aus einem doppelbrechenden Material (z.B. Quarz). Ihre Dicke ist für eine bestimmte Wellenlänge so dimensioniert, dass der Polarisationsanteil des

Laserlichtes entlang der schnellen Achse durch den von der langsamen Achse verschiedenen Brechungsindex genau um π phasenverschoben wird. Durch Überlagerung der beiden Anteile wird dann die Polarisationsrichtung des Laserstrahls um das Zweifache des Winkels gedreht, der zwischen dieser Richtung und der optischen Kristallachse liegt. Hinter der Halbwellenplatte wird der senkrecht polarisierte Anteil des Laserpulses an zwei Dünnschichtpolarisatoren reflektiert, der waagrecht polarisierte Anteil jedoch transmittiert. Dies wird dadurch erreicht, dass der einfallende Laserstrahl die Polarisatoren unter dem Brewsterwinkel trifft und damit nur der senkrecht polarisierte Anteil des Feldes die atomaren Dipole des Materials zu Schwingungen anregt. Je nach Stellung der Halbwellenplatte kann am Ausgang des Abschwächers die Energie des Pulses, welcher nun ausschließlich senkrecht polarisiert ist, stufenlos eingestellt werden. Die Einkopplung des Laserstrahls in die Vakuumkammer erfolgt durch ein BK7-Vakuumsichtfenster mit einer Stärke von 3mm. Hinter dem letzten Umlenkspiegel vor dem Sichtfenster befindet sich auch die Fokussierlinse (Bikonvex, später plankonvex). Soweit bei den Messungen nicht anders angegeben, hat diese eine Brennweite von 200mm und ist auf einem dreiachsigen Präzisionsstelltisch montiert.

3.1.2 Bestimmung der Laserintensität im Fokus

Die Intensität eines kurzen Laserpulses ist definiert als die gesamte Energie U_{Ges} pro Fläche und Pulsdauer τ, wobei sich die Fläche aus dem Strahlradius $w(z)$ an der Postion z ergibt:

$$I(z) \propto \frac{U_{Ges}}{\tau \pi w(z)^2} \tag{3.3}$$

Gegeben sei ein Laserpuls mit gaußförmiger Einhüllender in Amplitude des Feldes E_0 und Zeit

$$E(r,t) = E_0 e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} exp\left[-2ln(2)\frac{t^2}{\tau_F^2}\right] \; sin\,\omega t \tag{3.4}$$

mit der Strahltaille $w_0 = w(z=0)$ im Fokus (Abb.3.6) und der Pulsdauer τ_F, gemessen über die volle Breite auf der Hälfte des Maximums (FWHM). Die Rayleighlänge

$$z_R = (\pi w_0^2)/\lambda \tag{3.5}$$

gibt an, in welchem Abstand vom Fokus sich die Strahltaille um den Faktor $\sqrt{2}$ vergrößert hat. Die Intensität ist definiert als das Quadrat der Feldstärke $E(r,t)$ und die Gesamtenergie des Pulses als

$$U_{Ges} = \int_{-\infty}^{\infty}\int_{0}^{\infty} |E(r,t)|^2 = E_0^2 e^{-\frac{2r^2}{w_0^2}} e^{-\frac{4ln(2)t^2}{\tau_F^2}} \; (sin\omega t)^2 \, 2\pi r dr dt \tag{3.6}$$

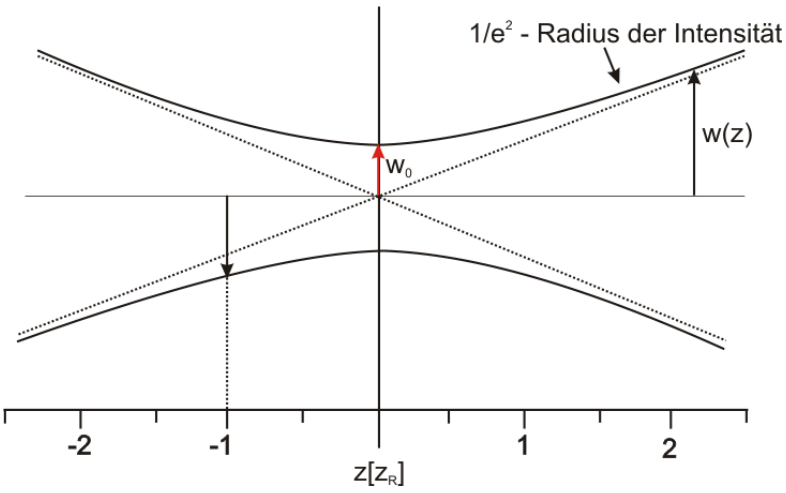

Abbildung 3.6: Gauss-Strahl im Fokus. Die Position z ist in Einheiten der Rayleighlänge z_R (Gl. 3.5) angegeben.

Führt man das Integral aus, erhält man mit $I = (1/2)\epsilon_0 c E_0^2$ folgenden Ausdruck für die Gesamtenergie

$$\begin{aligned} U_{Ges} &= \frac{\tau_F \pi w_0^2 \sqrt{\pi}}{4\sqrt{ln2}} \cdot I \\ \Leftrightarrow I &= \frac{U_{Ges} \cdot 4\sqrt{ln2}}{\tau_F \pi w_0^2 \sqrt{\pi}} \ . \end{aligned} \tag{3.7}$$

Für die Intensitätsbestimmung sind also drei Parameter zu messen: die Pulsdauer, die Energie pro Laserpuls und die Strahltaille im Fokus w_0. Die Pulsenergie wird mit einem pyroelektrischen Sensor QE25SP-S-MT der Firma GenTec gemessen. Für die Pulsdauermessung werden entweder ein Einzelschuss-Autokorrelator für das 10Hz-System oder das SPIDER-Verfahren [44] (*Spectral-Phase-Interferometry for Direct Electric field Reconstruction*) mit einem kommerziellen Gerät der Firma APE verwendet. Beide Messtechniken liefern die volle Pulsbreite bei halber Maximalamplitude τ_F (*Full Width at Half Maximum*) des Intensitätsprofils.
Es gibt zwei Möglichkeiten um den Strahlradius im Fokus zu bestimmen: die vergrößernde Abbildung des Fokus mit einer Linse auf eine Kamera oder Abschwächung des Strahls mit einer scharfen Kante (z.B. einer Rasierklinge). Der Vorteil der ersten Methode ist, dass man keinen direkten Zugriff auf den Fokuspunkt, der normalerweise in der Vakuumkammer liegt, benötigt. Über eine Linse mit passender Brennweite lässt sich der aus der Kammer austretende Strahl nutzen um den Fokus auf eine hochauflösende Kamera abzubilden. Mit der Brennweite der Abbildungslinse f, der Bildgröße auf dem

Kamerabild B und der Bildweite b (Linse-Kamera) berechnet sich der Fokusdurchmesser G zu

$$G = \frac{B \cdot f}{b - f} \tag{3.8}$$

Der Nachteil dieser Methode ist jedoch, dass die Brennweite der abbildenden Linse sehr genau für die verwendete Wellenlänge des Lasers bekannt sein muss.
Für die Abschwächungsmessung mit einer Schneidkante (auch als *Knife-Edge-Methode* bekannt) wird der Laserpuls hinter der Fokussierlinse mit einem Spiegel umgelenkt und eine scharfe Rasierklinge im Fokusbereich mit einem Präzisionsstelltisch in das Strahlprofil geschoben. Die Gesamtintensität eines Laserpulses mit gaußförmiger Intensitätsverteilung ist

$$I(x, y) = I_0 e^{-2x^2/w_x^2} \cdot e^{-2y^2/w_y^2} \tag{3.9}$$

wobei w_x und w_y die $1/e^2$-Strahlradien des Gaußprofils sind. Die Gesamtenergie U_{Ges} ergibt sich, wie in 3.7, aus dem Integral über I(x,y). Die Klinge schneidet nun einen Teil der Energie bis zu einer Position X ab, so dass U(X) übrigbleibt:

$$\begin{aligned} U(X) &= U_{Ges} - I_0 \int_{-\infty}^{X} e^{-2x^2/w_x^2} dx \int_{-\infty}^{\infty} e^{-2y^2/w_y^2} dy \\ &= \frac{U_{Ges}}{2} - \sqrt{\pi/2} I_0 w_y \int_{0}^{X} e^{-2x^2/w_x^2} dx \end{aligned} \tag{3.10}$$

Über eine Substitution $u^2 = 2x^2/w_x^2$, $dx = w_x du/\sqrt{2}$ erhält man für U(X) die Formel

$$U(X) = \frac{U_{Ges}}{2} \left[1 - erf\left(\frac{\sqrt{2}X}{w_x} \right) \right] \tag{3.11}$$

Die Strahlrestenergie U(X) wird für die Fokusmessung nun mit einer Linse auf eine Photodiode fokussiert und die Photospannung, welche proportional zu U(X) ist, als Funktion von X gemessen. Mit (3.11) lässt sich dann eine Kurvenanpassung durchführen, die als Fitparameter direkt den Strahlradius w_x an der Position z entlang der Laserstrahlachse enthält. In Abbildung 3.7a ist eine solche Messung dargestellt. Prinzipiell würde es nun genügen, dieses Verfahren einmal an der Position des Laserfokus durchzuführen; der Anpassungsparameter dieser Klingenposition ergäbe direkt die gesuchte Strahltaille w_0. Dabei sind jedoch zwei potenzielle Fehlerquellen zu berücksichtigen: Erstens ist meist die genaue Position des Laserfokus auf der Laserstrahlachse nicht genau bekannt, der gemessene Strahlradius ist also immer zu groß. Zweitens ist der Verlauf der Funktion U(X) im Bereich des Fokus sehr steil, dass möglicherweise die Einstellgenauigkeit des

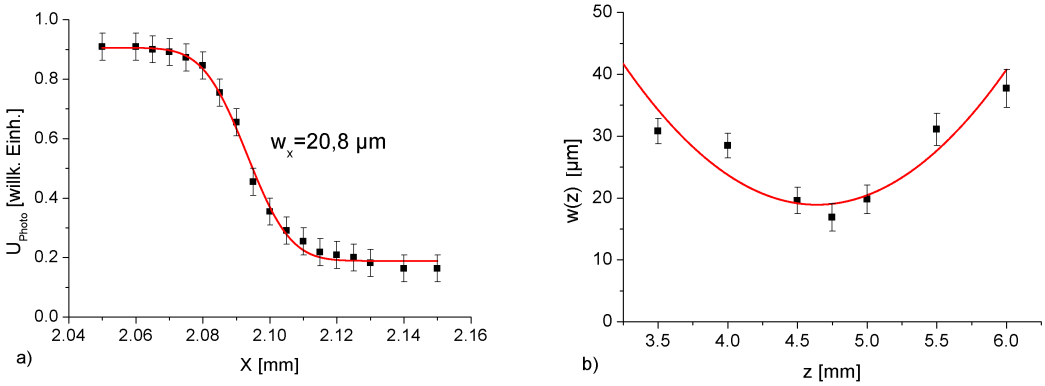

Abbildung 3.7: a) Abhängigkeit der Laserenergie von der Position X der Rasierklinge im Strahlprofil. Der Laserpuls wurde mit einer Plankonvexlinse mit f=200mm Brennweite fokussiert und in der Nähe des Fokus mit der Klinge abgeschnitten. Die Positionsangaben für X entsprechen der Stellung der Mikrometerschraube am Stelltisch. b) Gemessene Strahltaillen für verschiedene Positionen der Klinge entlang der Laserstrahlachse. Die Anpassung nach 3.12 ergibt einen Strahlradius von $w_0 = 17.7\mu m(\pm 1.2)$ am Ort des Laserfokus.

Mikrometerstelltisches nicht mehr ausreicht.

$$w(z) = w_0 \left(1 + \frac{z^2}{z_R^2}\right)^2 \tag{3.12}$$

Da der funktionale Zusammenhang zwischen $1/e^2$-Strahltaille und der Position auf der Laserachse bekannt ist ($z_R = \pi w_0^2/\lambda$ ist die Rayleighlänge), lassen sich diese Probleme dadurch umgehen, dass man um den Fokusbereich herum mehrere Messungen von U(X) durchführt, die jeweiligen Strahltaillen bestimmt und diese als Funktion von z mit (3.12) anpasst. Damit erhält man den letzten zur Intensitätsbestimmung notwendigen Parameter w_0. Abbildung 3.7b zeigt diese Anpassung für die in dieser Arbeit am häufigsten verwendeten Fokussierlinse (plankonvex, f=200mm). Es werden mit diesen Strahlparametern am kommerziellen 1kHz-Lasersystem von Spectra-Physics Intensitäten im Fokus von $1 \cdot 10^{16}\, W/cm^2$ bei einer FWHM-Pulsdauer von 40fs und einer Pulsenergie von 2.3 mJ erreicht.

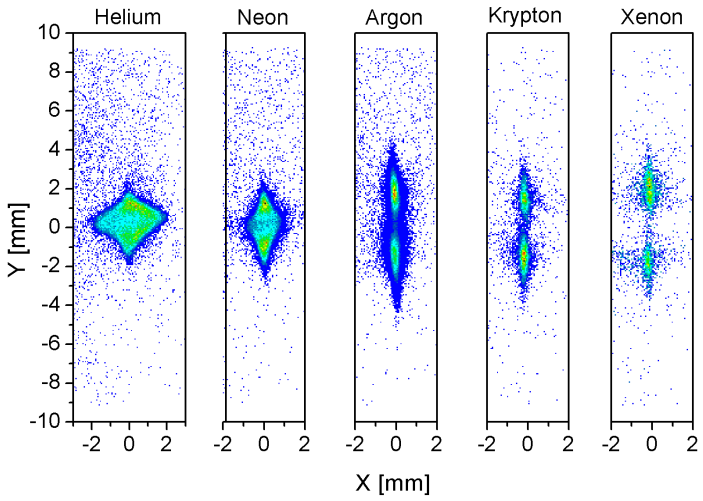

Abbildung 3.8: Ortsaufgelöste Verteilung angeregter neutraler Edelgasatome bei einer Laserintensität von $2.8 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$

3.2 Edelgasatome in angeregten Zuständen

Im folgenden Abschnitt werden die Ergebnisse der Messungen an Edelgasen dargestellt, die sowohl orts- als auch zeitaufgelöste Spektren umfassen. Abbildung 3.8 zeigt eine Zusammenstellung von ortsaufgelösten Spektren der fünf Edelgase Helium, Neon, Argon, Krypton und Xenon. Die Detektorbilder zeigen, dass bei allen Gasen langlebige angeregte Zustände nach Wechselwirkung mit dem Laserpuls bevölkert werden. Hierbei weisen jeweils die Ortsverteilungen von Helium und Neon mit einer Querstreuung der Atome im Laserfokus und die Verteilungen von Argon, Xenon und Krypton mit einer Doppelspitzenstruktur Ähnlichkeiten untereinander auf. Die erstgenannte Querauslenkung bei Helium und Neon ist auf den Einfluss der ponderomotorischen Kraft des Laserfeldes zurückzuführen. Dieser Effekt wird daher gesondert im Kapitel 5 ausgewertet. Bei den schwereren Edelgasen ist dieser Effekt nur schwach ausgeprägt. Das lokale Minimum in den Ortsprofilen zeigt die Position des Fokuspunktes, ausgehend von diesem Punkt verbreitert sich die Ortsverteilung. Dies ist jedoch nicht auf die Aufweitung des Laserstrahls zurückzuführen, da bei einem Strahlradius von $18\mu m$ und einer Rayleighlänge von 1.2mm der Laserstrahl auf der Längenskala der Atomverteilung in Abb. 3.8 lediglich ein dünner Strich ist. In Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls wird die Verteilung durch die Divergenz des Gasstrahls und damit durch die Abbildungsgeometrie der Apparatur verbreitert. Dies trifft zwar auch auf die Verteilung senkrecht zum Laserstrahl zu, durch den nur wenige μm breiten Laserstrahl wird diese jedoch vom Detektor nicht aufgelöst.

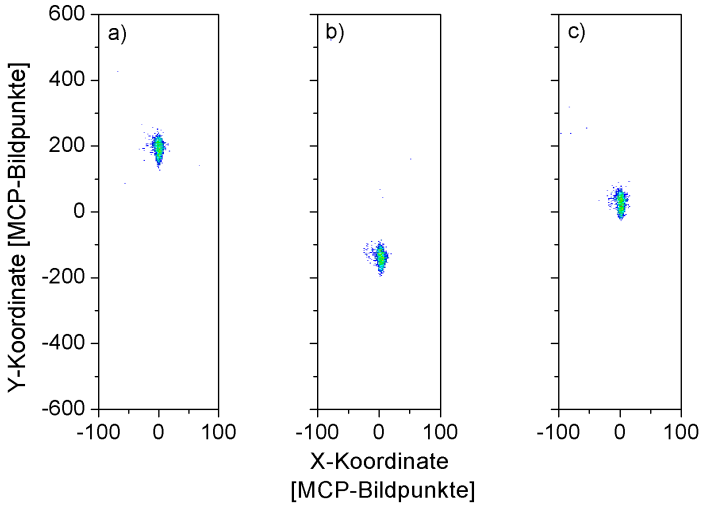

Abbildung 3.9: Messungen zur Bestimmung der Abbildungsgeometrie. Die Spektren zeigen die Verteilung von Neonatomen bei einer Intensität von $2,5 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$. a) und b) Der Laserfokus befindet sich 5mm vor bzw. hinter der Kammermitte, c) der Fokus befindet sich in der Mitte der UHV-Kammer

Der Faktor der Verbreiterung wird im folgenden über die Position der Auftrefforte der neutralen Atome bestimmt.

3.2.1 Abbildungsmaßstab

Zur Auswertung ortsaufgelöster Spektren müssen die Abbildungseigenschaften des Aufbaus bekannt sein. Das Steuerprogramm des HM1-TDC liefert die Rohdaten in Form von Bildern mit einer Auflösung von 1200x1200 Pixeln bei voller Ansicht der MCP-Detektoroberfläche. Die Mitte des Detektors erhält dabei die Koordinaten $(x = 0, y = 0)$. Der Detektor hat einen aktiven Durchmesser von 80mm, die Pixelwerte werden daher zuerst auf Werte in mm-Skala umgerechnet. Durch eine Messung der Dunkelrate des MCP lässt sich die aktive Fläche im Bild ausmachen; der Radius beträgt 564 Bildpunkte. Daraus ergibt sich der Umrechnungsfaktor MCP-Bildpunkte $\leftrightarrow$ mm-Skala zu 14.11.

Zur Bestimmung des Abbildungsmaßstabes Laserfokus $\leftrightarrow$ MCP-Ebene werden drei ortsaufgelöste Spektren von angeregten Neonatomen aufgenommen: bei einer liegt der Laserfokus in der Mitte der Wechselwirkungszone (Abb. 3.9c), bei den anderen wird der Fokus durch Bewegung der Linse um je 5mm nach vorne und nach hinten (bezüglich der Laserstrahlrichtung) verschoben (Abb. 3.9a und b). Die Blende ist aus dem Gasstrahl entfernt worden, der Strahl dementsprechend divergent und hat einen größeren Durchmesser

im Bereich des Fokus. Die Spektren können nun auf die mm-Skala des MCP-Detektors umgerechnet und dann die Abstände der Zentren der Atomanhäufungen ausgemessen werden. Die Zentren sind 11.6mm voneinander entfernt, was bei einer Flugstrecke von 38cm einem Abbildungsmaßstab von 2.3 entspricht.

3.2.2 Flugzeitspektren

Zusätzlich zu den ortsauflösenden Spektren können über Flugzeitverteilungen der neutralen Atome die Teilchengeschwindigkeiten im Gasstrahl vermessen werden. Die in den Abbildungen 3.10 und 3.11 dargestellten Flugzeitspektren neutraler angeregter Atome zeigen die Ergebnisse für verschiedene Edelgase (Helium, Krypton und Argon) und für Helium zusätzlich für zwei unterschiedliche Düsentemperaturen. Dabei wurde von der Möglichkeit Gebrauch gemacht die Düsenstrahlquelle mit Flüssigstickstoff auf 123K abzukühlen. Die Daten wurden mit dem 4-Kanal-Digitizer (acqiris) erfasst. Der qualitative Verlauf der Verteilungen deutet auf eine Maxwell-Geschwindigkeitsverteilung hin, die an die Messdaten angepasst werden kann. Gemäß der Maxwellverteilungsfunktion verbreitern sich die Spektren zu längeren Flugzeiten. Des Weiteren ist bemerkenswert, dass auch nach einer Flugzeit von über 1.5ms noch Atome in Rydbergzuständen (z.B. bei Krypton in Abb. 3.10) nachgewiesen werden. Da nach [32, 33] auch Zustände mit niedrigem $n < 10$ durch die Laseranregung bevölkert werden, ist der Einfluss der Lebensdauer der angeregten Zustände auf die Flugzeitverteilungen zu diskutieren (siehe Abschnitt 3.2.3).
Zuvor wird unter der Annahme, dass die Eigenschaften des Gasstrahls nicht mit der Zustandsbesetzungsverteilung korreliert ist, eine Charakterisierung des Strahls mit Bestimmung der Dichte und Strahlgeschwindigkeit durchgeführt.

Geschwindigkeitsverteilung im Gasstrahl

Die Geschwindigkeitsverteilung im Gasstrahl, der die Düse verlässt, hängt von der Gasart, der Temperatur der Bornitridüse und dem Staudruck in der Düse ab. Allgemein gilt für die Geschwindigkeitsverteilung in einem effusiven Gasstrahl die Maxwellverteilung

$$f(v)dv = \sqrt{\frac{2}{\pi}} v^2 \left(\frac{m}{k_B T}\right)^{\frac{3}{2}} e^{-mv^2/(2k_B T)} dv \tag{3.13}$$

Die mittlere Geschwindigkeit ist gegeben durch $\bar{v} = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m}}$ und die wahrscheinlichste Geschwindigkeit (das Maximum der Verteilung) durch $\hat{v} = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}}$ (k_B ist die Boltzmannkonstante und m die Masse der Gasatome). Die Atome verlassen die Düsenöffnung

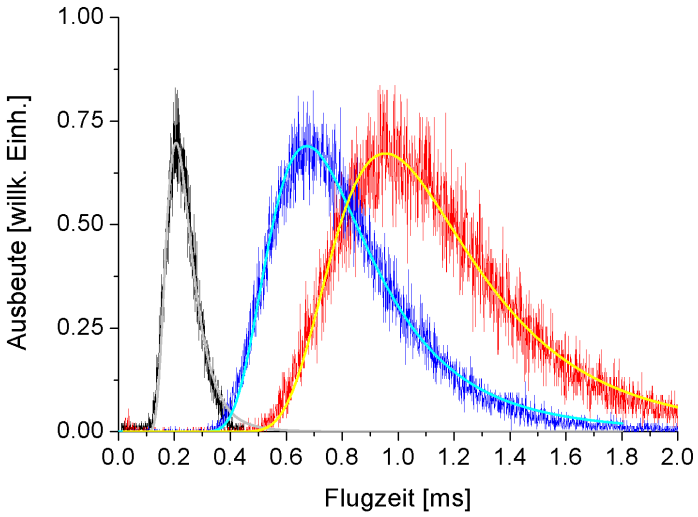

Abbildung 3.10: Flugzeitspektren für neutrale angeregte Edelgasatome bei 300K Düsentemperatur. Schwarz: Helium, 35mbar Staudruck; Blau: Argon, 2mbar Staudruck, Rot: Krypton, 1,5mbar Staudruck

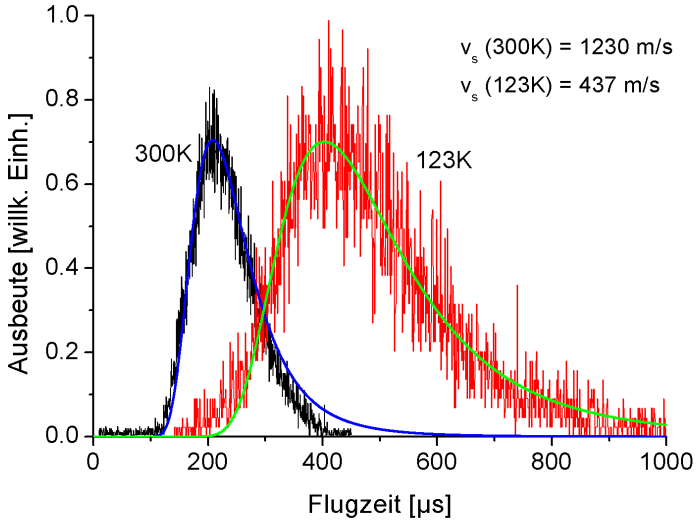

Abbildung 3.11: Flugzeitspektren für neutrale angeregte Heliumatome bei 300K (Schwarz) und 123K (Rot) Düsentemperatur. Die angegebenen Strahlgeschwindigkeiten ergeben sich aus einer Anpassung mit der modifizierten Maxwellverteilung (3.16) (blaue und grüne Kurven)

(Fläche σ) mit einer Rate v_0 und die Intensität in Strahlrichtung beträgt nach [45]

$$I(0) = \frac{v_0 \sigma}{\pi} \tag{3.14}$$

Mit $I(0) = 1.125 \cdot 10^{22} \frac{p_0}{\sqrt{MT}} \sigma \left[\frac{Atome}{srs}\right]$ (ebenfalls aus [45]) lässt sich die Strahlintensität, die Anzahl von Atomen pro Sekunde und Steradiant, für die hier verwendete Düsenstrahlquelle angeben (p_0: Staudruck in Torr; M: Molmasse der Gasatome). Sie beträgt bei einem Staudruck von 1 mbar und einer Temperatur von 300K etwa $7.7 \cdot 10^{16}$ Atome pro Sekunde und Steradiant. Der Druck und die Teilchenzahldichte $n(R, \Theta)$ im Bereich der Wechselwirkungszone ergibt sich aus der Zahl der Teilchen n_0, die die Düse verlassen, und dem Raumwinkelelement $d\Omega = 2\pi(1 - cos(r_{or}/R))$, unter dem die Düsenöffnung $\sigma = \pi r_{or}^2$ im Anstand R (in der Wechselwirkungszone) gesehen wird ([45]):

$$n(R, \Theta) = \frac{n_0 \sigma cos\Theta}{4\pi R^2} = n_0 \frac{d\Omega}{4\pi} \tag{3.15}$$

Bei einem Düsenradius von $100\mu m$ und einem Abstand R=27cm ergibt sich eine Teilchendichte von $4.3 \cdot 10^9$ Teilchen$/cm^3$, was einem Druck von $5 \cdot 10^{-7} mbar$ im Gasstrahl entspricht.
Bei einem Gasstrahl, der durch eine Düse erzeugt wird, weicht die Maxwellverteilung von der oben angegebenen ab, da die Geometrie der Düse Einfluss auf die Geschwindigkeitsverteilung nimmt. Gleichung 3.13 muss durch Hinzufügen einer Strömungsgeschwindigkeit v_s, die der Verteilung überlagert ist [46], modifiziert werden [39]:

$$f(v)dv \propto v^3 e^{-m(v-v_s)^2/(2k_B T)} dv \tag{3.16}$$

Mit der Formel 3.16 werden nun berechnete Verteilungen an die gemessenen Flugzeitspektren 3.10 und 3.11 angepasst. Die Höhe der einzelnen Zählraten ist in jedem Graphen normiert worden. Für die Kurvenregression wurden die Formeln (3.13) sowie (3.16) auf die Flugzeit transformiert und an die Messdaten angefittet. Wie aus den mit der modifizierten Maxwellverteilung (3.16) angepassten Kurven zu erkennen ist, wurde ein Gasstrahl erzeugt, dessen Strahlgeschwindigkeit erwartungsgemäß mit der Temperatur des Gasreservoirs zusammenhängt. Die Strahlgeschwindigkeit beträgt bei Stickstoffkühlung ungefähr ein Drittel der Geschwindigkeit bei Raumtemperatur. Betrachtet man statt Helium die Flugzeiten von schwereren Edelgasatomen wie Krypton oder Argon (Abb. 3.10), sinkt die Strahlgeschwindigkeit von $1230 m/s$ (Helium) auf $196 m/s$ (Krypton), bzw. $248 m/s$ (Argon). Setzt man den Staudruck in der Düse soweit herab, dass er weniger als 0.1 mbar beträgt, ist eine andere Flugzeitverteilung zu erwarten, die der Maxwellverteilung (3.13) entspricht, da die Düsengeometrie weniger Einfluss auf die Geschwindigkeiten im Strahl hat. Abbildung 3.12 zeigt eine Messung von angeregten Argonatomen bei einem geringen Staudruck, die diese Annahme bestätigt: Die Anpassung

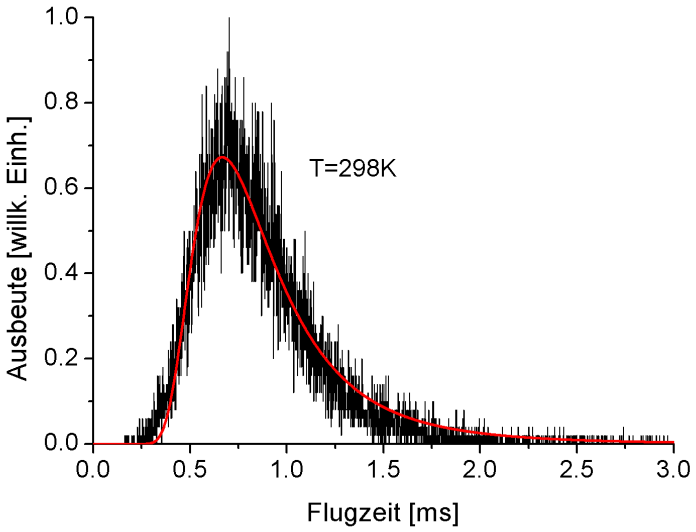

Abbildung 3.12: Flugzeitspektrum für neutrale angeregte Argonatome bei 300K Düsentemperatur. Der Staudruck beträgt weniger als 1mbar, die Anpassung mit der Maxwellverteilung 3.13 ergibt eine Temperatur von 298K im effusiven Strahl.

wurde mit der unmodifizierten Maxwellverteilung (3.13) durchgeführt und stimmt mit den Messdaten überein. Aus dem Fitparameter der wahrscheinlichsten Geschwindigkeit (das Maximum der Verteilung) lässt sich die Temperatur T bestimmen; in diesem Fall ergibt die Auswertung eine Temperatur von 298K im Strahl.
Die Ergebnisse aus den Flugzeitspektren sind für die weiteren Experimente in zweierlei Hinsicht wichtig: Zum einen lassen sich aus den Daten die Zeitfenster für die Datenerfassung jedes einzelnen Gases festlegen. Insbesondere bei den Messungen zur Beschleunigung von neutralen Heliumatomen durch das Laserfeld ist es notwendig, den Flugzeitbereich und damit die Teilchengeschwindigkeiten auf einen kleinen Bereich einzugrenzen, um auf einen definierten Beschleunigungswert rückschließen zu können. Zum anderen darf speziell bei Untersuchungen an Molekülfragmenten die kinetische Energie aus dem thermischen Strahl nicht vernachlässigt werden, da die Flugzeiten bei Molekülfragmenten, wie später noch erläutert werden wird, wesentlich kürzer sind als bei neutralen Atomen (wenige 10μs anstatt einige 100μs). Die Flugzeitspektren der Edelgasatome liefern so einen Wert zur Abschätzung der kinetischen Energie, die die Atome aus der Gasstrahlgeschwindigkeit erhalten. Die in Kapitel 5 bestimmte Geschwindigkeitszunahme durch Beschleunigung der Atome im Feld des Laserpulses hat zwar einen Einfluss auf die Geschwindigkeitsverteilung, dieser ist mit einer maximal gemessenen Geschwindigkeit von ca. 60 m/s beim leichtesten Gas Helium vernachlässigbar.

Element	metastabiles Niveau	Lebensdauer [s]
He	$1s2s\ ^3S_1$	9090
He	$1s2s\ ^1S_0$	0.0197
Ne	$2p^5 3s\ ^3P_2$	>0.8
Ne	$2p^5 3s\ ^3P_0$	>0.8
Ar	$2p^5 4s\ ^3P_2$	38
Ar	$2p^5 4s\ ^3P_0$	38
Kr	$2p^5 5s\ ^3P_2$	39
Kr	$2p^5 5s\ ^3P_0$	39
Xe	$2p^5 6s\ ^3P_2$	43
Xe	$2p^5 6s\ ^3P_0$	ca. 0.13

Tabelle 3.1: Einige Metastabile Zustände der Edelgase, aus [35] entnommen.

3.2.3 Lebensdauer und Zerfall der angeregten Zustände

Wie bereits oben erwähnt, ist bei allen gemessenen Spektren von Atomen in einem angeregten Zustand die Lebensdauer dieses Zustands zu berücksichtigen. Bei Edelgasen können neben Rydbergzuständen mit hinreichend hohen n-Quantenzahlen, welche Lebensdauern in der Größenordnung der Flugzeit haben, auch metastabile Zustände besetzt werden. Diese metastabilen Zustände (bei Helium z.B. die 1s2s-Zustände) werden entweder durch direkten Zerfall aus einem höher liegenden Zustand oder durch eine Zefallskaskade bevölkert. Nach [35] haben alle hier untersuchten Edelgase mindestens einen solchen metastabilen Zustand mit ausreichend langer Lebensdauer. Tabelle 3.1 enthält dazu eine Übersicht. Beim Zerfall der kurzlebigeren Rydbergzustände wird jedoch auch der Grundzustand des jeweiligen Atoms bevölkert. Diese tragen dann nicht mehr zum gemessenen Spektrum bei, es ist daher notwendig das Zerfallsverhältnis und damit auch die Detektionseffizienz der Methode des direkten Nachweises abzuschätzen. Die Wahrscheinlichkeiten, mit denen ein bestimmter Zustand beim Zerfall besetzt wird, lässt sich durch das Lösen von Ratengleichungen ermitteln.

$$\begin{aligned} \dot{N}_r(t) &= -R_g \cdot N_g(t) - R_k \cdot N_k(t) \\ \dot{N}_g(t) &= R_g \cdot N_r(t) \\ \dot{N}_k(t) &= R_k \cdot N_r(t) \end{aligned} \tag{3.17}$$

Hier sind N_r, N_k und N_g die Besetzungszahlen von angeregtem Zustand, vom Kontinuum und vom Grundzustand. Die Ratengleichungen 3.17 enthalten allerdings nicht die zusätzliche Umverteilung der Zustände durch Schwarzkörperstrahlung (Black-Body-Radiation), dies wurde hier vernachlässigt. Die Übergangswahrscheinlichkeiten R_g und R_k können

für Wasserstoff analytisch berechnet werden und sind als Einstein-Koeffizienten für spontanen Zerfall des Zustands $|nl\rangle$ nach $|n'l'\rangle$ gegeben durch [47]

$$A_{nl\to n'l'} = \frac{4}{3}\alpha^3\,\omega^3_{nl\to n'l'}\frac{max(l,l')}{2l+1}|\langle n'l'|r|nl\rangle|^2 \tag{3.18}$$

Für die Energiedifferenz $\omega^3_{nl\to n'l'}$ zwischen den Zuständen gilt

$$\omega_{nl\to n'l'} = (2n^2)^{-1} - (1/2n'^2)^{-1} \tag{3.19}$$

Für eine Abschätzung der Besetzungswahrscheinlichkeit der Zustände mit n>2, also alle außer dem Grundzustand und dem metastabilen Zustand, nach einer bestimmten Flugzeit der Atome werden die Ratengleichungen 3.17 mit den für Wasserstoff analytisch bekannten Übergangsmatrixelementen gelöst. Für jeden Zustand $|n,l\rangle$ ist in Abbildung 3.13 die nach einer bestimmten Flugzeit verbleibende Besetzungswahrscheinlichkeit für einen angeregten Zustand dargestellt. Alle Zustände mit n<10 sind unabhängig von l nach 50μs gemäß des Verzweigungsverhältnisses in den metastabilen Zustand oder in den Grundzustand zerfallen. Zustände mit größeren n haben mit wachsendem l eine höhere Lebensdauer. Nach 200μs, der wahrscheinlichsten Flugzeit von Helium, verschiebt sich diese Grenze zu noch höheren n. Somit lässt sich abschätzen, wie viele Atome den Detektor noch in einem hohen Rydbergzustand erreichen.
Bei Mehrelektronenatomen weicht das atomare Potential vom Coulombpotential ab, daher wird für die Energie eines Zustands in Alkaliatomen und einfach angeregtem Helium eine effektive Quantenzahl mit einem Quantendefekt δ_l eingeführt, die die Abweichung vom Coulombfeld des Wasserstoffatoms beschreibt und nur von der Bahndrehimpulsquantenzahl l abhängt:

$$\omega_{nl} = \frac{1}{2(n-\delta_l)^2} \tag{3.20}$$

Die Besetzungswahrscheinlichkeiten der einzelnen Zustände für Helium können durch Lösen von 3.17 bestimmt werden, bei den schwereren Edelgasen sind die zu erwartenden Wahrscheinlichkeiten vergleichbar. Die für die Ratengleichung notwendigen Koeffizienten (3.18) sind für Helium und alle schwereren Elemente nicht mehr analytisch berechenbar, wodurch der numerische Aufwand zur Lösung der Ratengleichungen für die Edelgase viel höher wird. Für hochangeregte Rydbergzustände sind die Besetzungswahrscheinlichkeiten für Wasserstoff jedoch eine gute Näherung. Eine Möglichkeit, die Verteilung von angeregten Zuständen nach der Laserwechselwirkung bei Argon und den schwereren Edelgasen experimentell zu bestimmen, ist die gezielte Feldionisation von Rydbergzuständen. Dies ist in dieser Arbeit allerdings nur bei Zuständen mit hoher n-Quantenzahl (n > 15) im Experiment realisierbar, da Zustände mit niedrigeren n höhere Feldspannungen erfordern als die Versuchsapparatur ermöglicht.

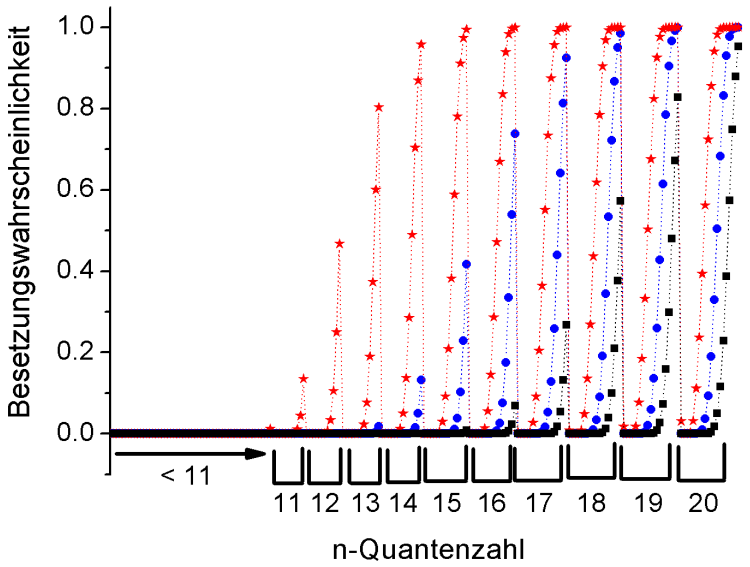

Abbildung 3.13: Besetzungszahlen für angeregte Zustände $|n, l\rangle$ von $|n = 2, l = 1\rangle$ bis $|n = 20, l = 19\rangle$ im Wasserstoffatom nach (■) 500μs, (●) 200μs und (★) 50μs Propagationszeit

3.2.4 Besetzungsverteilung angeregter Zustände in schweren Edelgasen

Mit einer Messung der Ausbeute angeregter neutraler Atome in Abhängigkeit von der angelegten Feldspannung werden im Folgenden zwei Aspekte der Zustandsbesetzung nach der Laserwechselwirkung untersucht. Zum einen wird festgestellt, ob überhaupt Atome in feldionisierbare Rydbergzustände mit hohen n angeregt werden. Zum anderen wird ermittelt wie viele Atome in diesen Zuständen den MCP-Detektor überhaupt erreichen. Der Nachweis von Rydbergzuständen wird mittels eines elektrischen Feldes durchgeführt, welches nach dem Laserpuls um die Wechselwirkungszone angelegt wird. *R.R. Jones et al.* [33] beispielsweise verwendeten diese Methode zum Nachweis von Krypton-Rydbergzuständen. In den Experimenten dieser Dissertation werden die Feldplatten in Wiley-McLaren-Anordnung (Abb. 3.3) zur Erzeugung eines homogenen Feldes um die Wechselwirkungszone verwendet. Die Spannung wird mit einem Hochspannungsschalter kurz nach dem Laserpuls (ca. 100ns bis 1μs) ein- und nach 100μs wieder abgeschaltet oder wahlweise auch permanent angelegt. Bei einer maximal möglichen Feldstärke von $4kV/cm$ werden nach der Formel

$$F_n = \frac{1}{16n^4}\, 5.14 \cdot 10^9 V/cm \tag{3.21}$$

alle Zustände mit n > 17 feldionisiert (siehe [48]). Zur Untersuchung der Besetzung der Zustände, die die angeregten Atome beim Auftreffen auf den Detektor haben, wird zusätzlich ein weiteres Feldplattenpaar (Abstand 1cm) direkt vor das Goldnetz des MCP-Detektors eingebaut, so dass der Gasstrahl das Plattenpaar mittig passiert. Die Hochspannung an diesen Elektroden wird nicht geschaltet, sondern liegt permanent an.
Abbildung 3.14 zeigt Messreihen zu den Edelgasen Argon, Krypton und Xenon, bei denen nur die Elektroden um die Wechselwirkungszone unter Spannung gesetzt wurden. In Abbildung 3.14a sind die Ausbeuten für Argon(●), Xenon(▲) und Krypton(■) bei verschiedenen Feldstärken dargestellt, wobei die Spannungen konstant an die Elektroden um die Wechselwirkungszone angelegt wurden. Die Intensität des Laserpulses beträgt $2.4 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$. Die Messungen wurden am fs-Lasersystem mit 10Hz Repetitionsrate durchgeführt, welches Energieschwankungen von ca. 10% (Puls zu Puls) im Betrieb hatte. Es wird daher zur Abschätzung der Messungenauigkeit angenommen, dass die Ausbeute im Bereich der Pulsenergieschwankungen annähernd linear zur Laserenergie sei. Der Messfehler ist daher auf 10% der jeweils gemessenen Ausbeute festgesetzt worden. Das Abfallverhalten aller drei Gase bei wachsendem Feld zeigt eine Abnahme der Ausbeute um einen Faktor 1.7 (Argon) bis 5 (Xenon), es werden also bei diesen Edelgasen Atome durch den Laserpuls in Rydbergzustände mit hohen n angeregt, die durch das elektrische Feld ionisiert bzw. deren Entstehung durch das statische Feld vermieden wird. Die Stärke der Signalreduktion ist bei allen Gasen unterschiedlich, bei Xenon reduziert sich die Ausbeute an angeregten neutralen Atomen am stärksten auf ein Fünftel. Dies bedeutet, dass bei Krypton und Xenon wesentlich mehr Atome einen feldionisierbaren Rydbergzustand besetzen als bei Argon. Eine mögliche physikalische Erklärung dafür ist die bei den schwereren Edelgasen niedrigere Bindungsenergie. Durch diese findet die Anregung eher im Multiphotonenbereich statt, wodurch die Bevölkerung von Rydbergzuständen begünstigt wird.
Es wurden des Weiteren Messungen bei unterschiedlichen Laserintensitäten durchgeführt (Abb. 3.14b-d). Der Graph 3.14b zeigt die Feldabhängigkeit der Ar*-Ausbeute bei $2 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$(■), $2.4 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$(■) und $3 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$(■). Die gestrichelten Kurven entsprechen den durchgezogenen gleicher Farbe und wurden auf die Daten der höchsten Intensität bei 130 V/cm normiert. Die gleichen Messungen wurden auch an Krypton(3.14c) Xenon(3.14d) bei den Intensitäten $1.5 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$(■) und $2.4 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$(■) durchgeführt. Alle Edelgase zeigen diesen Messungen zufolge bei unterschiedlichen Intensitäten das gleiche Abfallverhalten bei steigender Feldspannung. Die Besetzung der einzelnen Rydbergzustände der Atome im Strahl ist also bei Argon, Krypton und Xenon von der Laserintensität im untersuchten Bereich unabhängig. Da die ausgewählten Intensitäten größer sind als die Sättigungsintensität und die Zunahme des Signals nur auf den Volumeneffekt zurückzuführen ist, beschränkt sich die Gültigkeit dieses Ergebnisses der konstanten Besetzungsverteilung auf hohe Intensitäten.
Bei Anlegen eines elektrischen Feldes von bis zu 4kV/cm an das Plattenpaar direkt vor dem Detektor zeigte sich bei Argon keine Reduktion des Signals der angeregten

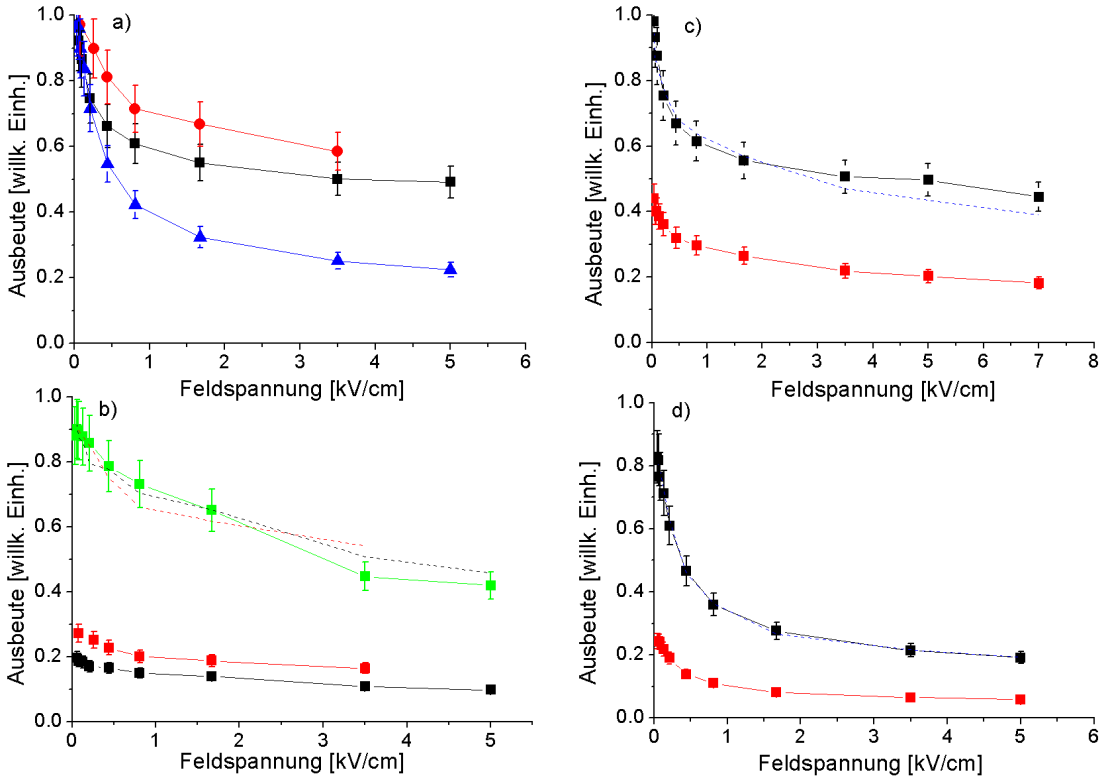

Abbildung 3.14: Abhängigkeit der Ausbeute an neutralen angeregten Edelgasatomen vom angelegten elektrischen Feld. a) Argon (●), Krypton (■) und Xenon (▲) bei statischem Feld b) Argon bei unterschiedlichen Laserintensitäten: (■) $2{\cdot}10^{15} W/cm^2$, (■) $2.4{\cdot}10^{15} W/cm^2$, (■) $3{\cdot}10^{15} W/cm^2$; Feldabhängigkeit bei Krypton (c) und Xenon (d): $1.5 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$(■) und $2.4 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$(■). Der Fehler ergibt sich aus 10% Messungenauigkeit der Ausbeute für jeden Datenpunkt. Zur Verbesserung der Übersichtlichkeit sind die Datenpunkte durch Linien verbunden worden. Weitere Ausführungen siehe Text.

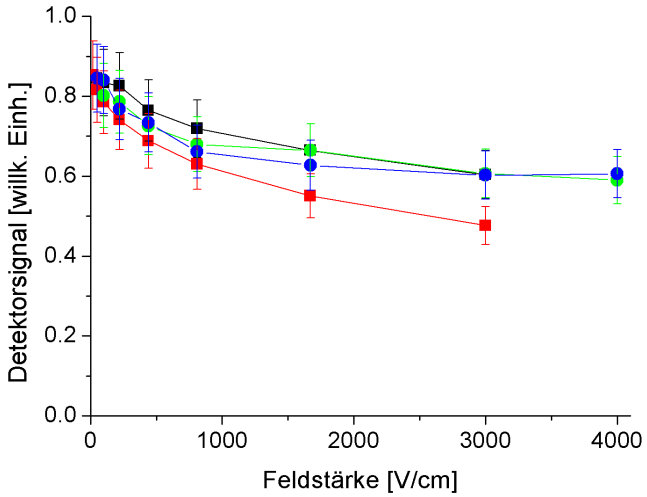

Abbildung 3.15: Abhängigkeit der Ar*-Produktion vom elektrischen Feld bei verschiedenen Feldkonfigurationen: (■): statisches Feld um Laserfokus, (■): Feldpuls (0.1-100μs nach Laserpuls) um Fokus, (●): statisches Feld vor Detektor, (●): Feldpuls vor Detektor (0.1-100μs nach Laserpuls)

neutralen Atome. Dies ist physikalisch nachvollziehbar, wenn man die (im Vergleich zu Helium) langen Flugzeiten der Argonatome zum MCP berücksichtigt. Die Zeiten für die möglichen Zerfalls- und Umverteilungsprozesse sind entsprechend länger und die meisten Atome, die sich nach der Laserwechselwirkung in feldionisierbaren Zuständen befanden, sind in die metastabilen Zustände übergegangen, die nicht mit 4kV/cm ionisiert werden können. Dazu kommt, dass zur Ionisation von Argon aus dem Grundzustand mit einem Laserpuls bei 800nm Wellenlänge etwa 11 Photonen notwendig sind. Entsprechend sind nur Rydbergzustände mit l-Quantenzahlen kleiner als 12 möglich, die jedoch nach Abb. 3.13 bei Flugzeiten oberhalb von 500μs bereits zerfallen sind. Dies bedeutet für den Detektionsprozess, dass durch die Laserwechselwirkung zwar hochangeregte Rydbergzustände in Argon (und auch Krypton und Xenon) entstehen, diese jedoch auf dem Weg zum Detektor entweder in den Grundzustand oder in den metastabilen Zustand zerfallen. Abschließend ist noch zu klären, wie sich die verschiedenen verwendeten Konfigurationen des elektrischen Feldes auf die Ausbeute an neutralen angeregten Atomen auswirkt. Abbildung 3.15 enthält die Ergebnisse von vier Messreihen am Gas Argon, wobei die Beschaltung der drei Elektroden des Wiley-McLaren-Plattenstapels (Abb. 3.3b) variiert wurde. Die Punkte (■) entsprechen der Feldkonfiguration der obigen Messungen, wo ein konstantes Feld am Elektrodenpaar um den Laserfokus anlag. (■) zeigt das Ergebnis für dasselbe Feld, jedoch mit einem Feldpuls von 100μs Dauer, der 100ns nach dem Laser geschaltet wurde. (●) und (●) entsprechen den Messungen, bei denen das Feld am detek-

torseitigen Plattenpaar anlag, wieder jeweils einmal gepulst und einmal statisch. Bei allen Messreihen beträgt die Laserintensität $5 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$. Für einen direkten Vergleich sind die Daten auf die Zählrate der geringsten Feldstärke normiert. Insgesamt zeigen alle vier Ergebnisse einen ähnlichen Abfall in den Ausbeuten bei zunehmendem elektrischen Feld. Lediglich das Ergebnis für ein statisches Feld um die Wechselwirkungszone weicht ab; die Rate ist bei 3kV/cm um den Faktor 1.7 gegenüber 20V/cm reduziert (Bei allen anderen Messungen: 1.4). Ein konstantes statisches Feld zum Zeitpunkt der Laserwechselwirkung verhindert die Anregung eines Teils der Atome im Strahl, ohne eine genaue Kenntnis der Besetzungszahlen der einzelnen |n,l>-Zustände lässt sich der Prozess allerdings nicht eindeutig identifizieren. Aus technischen Gründen liegt der ionisierende Spannungspuls erst nach einer minimalen Schaltzeit von 100ns in voller Stärke an. In dieser Zeit kann ein bestimmter Anteil der angeregten Atome in den metastabilen Zustand zerfallen; bei konstantem Feld werden auch diese Zustände feldionisiert, so dass diese versuchsbedingte Verzögerungszeit ein möglicher Grund für den Unterschied zwischen den Ausbeuten bei statischem und gepulstem Feld ist.
Aus Abbildung 3.15 lässt sich auch der Anteil der feldionisierbaren Rydbergzustände, welche nach dem Laserpuls vorliegen, entnehmen. Der Verlauf des Messsignals (■) ist oberhalb von 2.5 kV Feldspannung (entspricht nach Gl. 3.21 etwa n=20) annähernd konstant bei 0.65, die Fläche unter der Messkurve bis zu diesem Wert beträgt etwa 6% der Gesamtfläche. Damit liegt der Anteil an hochangeregten Zuständen direkt nach der Anregung bei ca. 6%.
Bis jetzt wurde gezeigt, dass es sich bei den nachgewiesenen Atomen um neutrale in angeregten Zuständen handelt, welche bei den schwereren Edelgasen (Argon, Krypton und Xenon) hauptsächlich metastabile Zustände sind. Rydbergzustände mit hohen n-Quantenzahlen werden ebenfalls vom Laserpuls erzeugt, erreichen aber aufgrund der langen Flugzeiten nicht den Detektor. Über eine Zerfallskaskade und das Verzweigungsverhältnis zerfallen die Rydbergzustände entweder in den metastabilen oder den Grundzustand. Der nächste Abschnitt befasst sich mit der Intensitätsabhängigkeit der Neutralenausbeute und dem Verhältnis dieser Ausbeute zur Ionisation der Atome.

3.3 Verhältnis von Anregung und Ionisation

Bisher wurde die Bildung angeregter neutraler Atome durch einen kurzen Laserpuls als Anregungsprozess ohne innere Struktur betrachtet. Frühere Experimente [32, 33] mit dieser Art von Anregung wurden, wie bereits erwähnt, als Multiphotonenprozess interpretiert. *H.G. Muller* [49] führte Berechnungen zum ATI-Prozess durch, durch Lösen der zeitabhängigen Schrödingergleichung fand er, dass ein Teil des ATI-Elektronenspektrums aus der Besetzung von Rydbergzuständen entsteht. Dabei tunnelt das Elektron aus dem Coulombpotential, wird aber durch die Langreichweitigkeit des Potentials wieder an Ionenrumpf gebunden. Im folgenden Kapitel werden Ergebnisse aus Experimenten

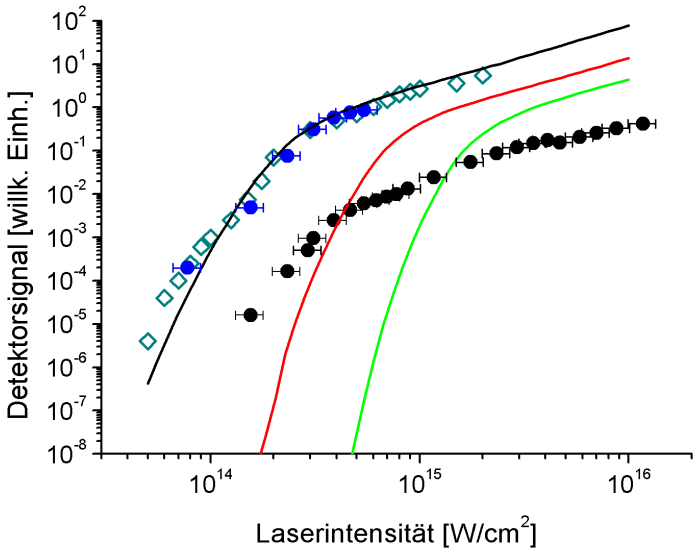

Abbildung 3.16: Gemessene Ionenausbeute für Ar^+(•) und Produktion von angeregten neutralen Argonatome(•) im Vergleich mit Literaturdaten aus [50] für Ar^+ (◇). Ebenfalls eingezeichnet sind numerisch berechnete ADK-Ionenausbeuten für Ar^+ (–), Ar^{2+} (–) und Ar^{3+} (–).

an Argon vorgestellt, die zur Beschreibung der Bildung hochangeregter Zustände das Tunnelbild nahelegen. Dies sind die Intensitäts- und Elliptizitätsabhängigkeit der Ar^*-Ausbeute.
Wenn der Anregung von Atomen durch kurze intensive Laserpulse ein Tunnelprozess zugrunde liegt, sind bei der Intensitätsabhängigkeit des Anregungsprozesses Ähnlichkeiten mit den Ionenausbeuten der gleichen Atome zu erwarten. Ein Vergleich der gemessenen Ionenausbeuten und Ar^*-Produktion mit Literaturdaten aus [50] und numerisch berechneten ADK-Ionenausbeuten, der in Abbildung 3.16 dargestellt ist, zeigt, dass die Anzahl der nachgewiesenen angeregten Argonatome im Mittel zwei bis drei Größenordnungen unter der der ersten Ionisationsstufe liegen. Die Ausbeuten für zwei- und dreifach ionisiertes Argon liegen in der gleichen Größenordnung, haben aber ein anderes Anstiegsverhalten. Eine bei höheren Ionisationsstufen auftretender Kniestruktur, die einen nichtsequentiellen Streuprozess (Nichtsequentielle Mehrfachionisation) kennzeichnet, fehlt ebenso. Die Erklärung, dass der Anregung eine Tunnelionisation vorausgeht, ist demnach möglich. Die Bindung des Elektrons an den Kern setzt nach dem Tunnelbild allerdings auch voraus, dass es durch die ponderomotorische Kraft nicht vom Kern wegbeschleunigt wird. Dies lässt sich am einfachsten durch Änderung der Polarisation von linear auf zirkular bei gleichzeitiger Messung der Neutralenausbeute überprüfen.

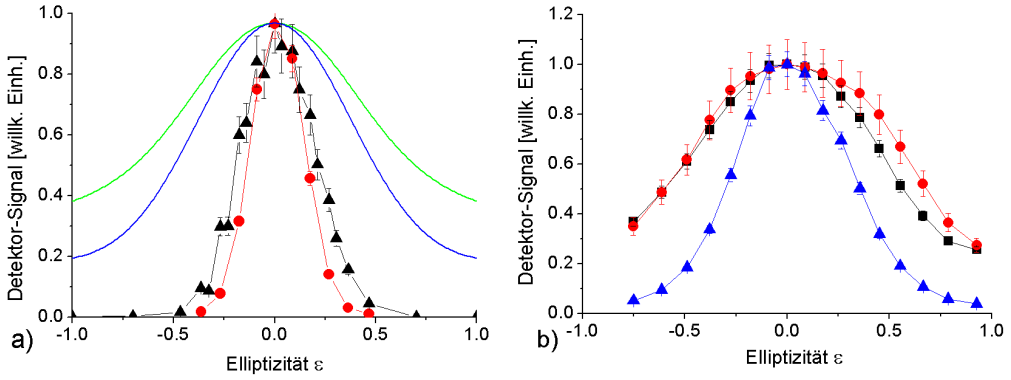

Abbildung 3.17: Elliptizitätsabhängigkeit angeregter Argonatome bei a) 800nm: $1.3 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ für die Messung von Ar* (▲) und $5.3 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ für die Messung von Ar^{2+} (●) und b) 400nm (▲: Ar^+-Ionenrate). (–) und (–) in (a) sind die Tunnelionisationsraten für Ar^+ nach Gl. 2.18 für $1 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ bzw. $5 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ bei $\epsilon = 0$.

3.3.1 Polarisationsabhängigkeit

Sollte die Anregung der Atome mit einem Prozess zusammenhängen, bei dem ein Elektron durch das elektromagnetische Feld des Lasers zum Ion zurückgetrieben wird, ist bei einer zirkularen Polarisation des Laserlichts eine Unterdrückung des Anregung zu erwarten. Bei zirkular polarisiertem Feld ist der Feldvektor konstant in einer Ebene und hat insbesondere nie eine verschwindende Amplitude. Auf das Elektron wirkt damit ständig eine ponderomotorische Kraft, die es vom Ionenrumpf wegtreibt. In Abbildung 3.17a sind die Ausbeuten an neutralen angeregten Argonatomen und zweifach geladenen Argonionen in Abhängigkeit von der Elliptizität $\epsilon = (b/a)$ dargestellt. Die Größen a und b sind die große und kleine Halbachse der Ellipse, die vom elektrischen Feldstärkevektor des Laserfeldes beschrieben wird. Ein Wert von $b = 0$ und damit $\epsilon = 0$ entspricht linearer Polarisation. Zur besseren Vergleichbarkeit wurde hier nicht die Einfachionisation, sondern die nichtsequentielle Doppelionisation von Argon herangezogen, da dieser nichtsequentielle Rückstreuprozess die gleiche Polarisationsabhängigkeit wie die bei der Ar*-Produktion haben sollte. Die Intensität, bei der die Ionenraten gemessen wurden, ist kleiner als die für die Messung der neutralen Atome. Dadurch wurde sichergestellt, dass das Ionensignal einem nichtsequentiellen Prozess zugeordnet werden kann. Die gemessenen Raten wurden auf den Ar*-Messwert für lineare Polarisation normiert. Die relative Messungenauigkeit beträgt bei den Ionenausbeuten 5% der Messwerte und bei der Ar*-Produktion 10 % aufgrund des größeren Detektionszeitfensters und dem damit verbundenen erhöhten Einfluss des Hintergrundrauschens. Die Elliptizitätsabhängigkeit

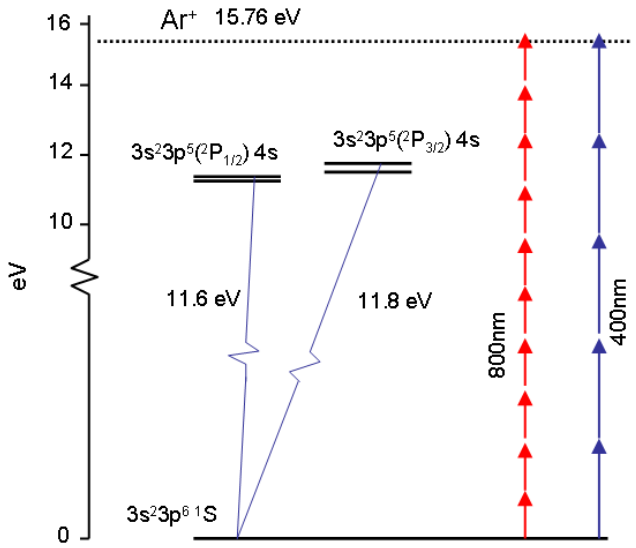

Abbildung 3.18: Termschema von Argon (Grundzustand und erste angeregte Zustände). Ebenfalls skizziert ist die Anzahl der zur Ionisation benötigten Photonen bei 400nm und 800nm Wellenlänge.

des Neutralen-Signals hat nach Abb.3.17a denselben Verlauf wie der nichtsequentielle Prozess der Doppelionisation, was ein deutlicher Hinweis auf den oben beschriebenen Prozess bei der Anregung neutraler Argonatome ist. Beide Kurven haben zudem ein deutlich steileres Abfallverhalten als bei der Einfachionisation von Argon zu erwarten wäre, selbst wenn man die nicht konstante Feldstärke bei wachsender Elliptizität und gleicher Pulsenergie in Gleichung 2.18 miteinbezieht.

In Abbildung 3.17b ist die gleiche Abhängigkeit von der Polarisation an Argon dargestellt, allerdings für die doppelte Laserfrequenz. Dazu wurde im Experiment der fs-Laserpuls mit einem nichtlinearen Kristall frequenzverdoppelt (Wellenlänge: 400nm) und die 800nm-Optiken durch äquivalente für 400nm ersetzt. Das Ergebnis ist nun das Gegenteil von der Messung mit der Fundamentalen: Die Abhängigkeit der Ar*-Ausbeute von ϵ entspricht nun dem Verlauf des Signals der Einfachionisation von Argon. Ebenso fällt auf, dass die Rate für doppelionisiertes Argon bei wachsender Elliptizität weniger schnell abfällt als bei der 800nm-Messung. Dieses Verhalten ist verständlich, da der Keldysh-Parameter (2.14) bei der doppelten Frequenz ebenfalls größer wird und daher das Tunnelmodell den vorliegenden Prozess nicht mehr angemessen beschreibt. Hier ist der Übergang in das Gebiet der Multiphotonenanregung deutlich zu erkennen, die Anzahl der zur Ionisation benötigten Photonen beträgt bei der zweiten Harmonischen (3 eV) nur noch fünf anstelle der 10 Photonen der Fundamentalen (1.55 eV) (Abb. 3.18).
Diese Ergebnisse legen nahe, den eigentlichen Anregungsvorgang in mehrere Prozesse

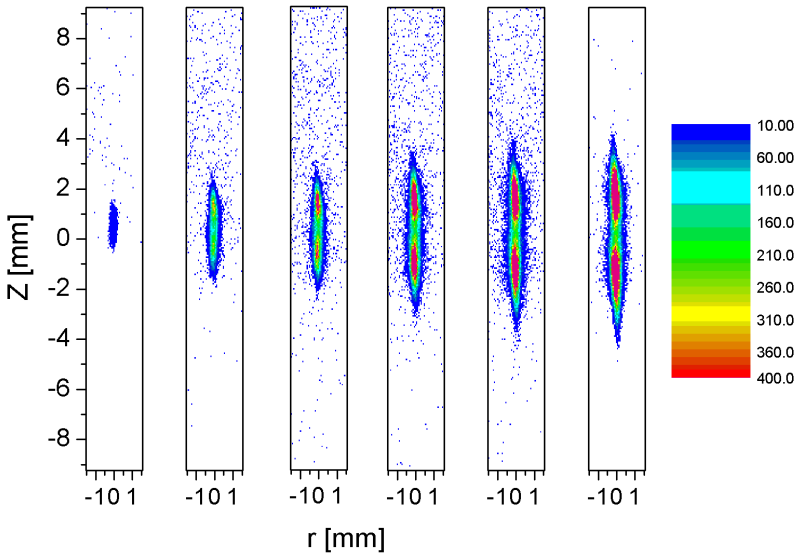

Abbildung 3.19: Ortsaufgelöste Verteilung angeregter Argonatome bei verschiedenen Laserintensitäten (von links nach rechts in $10^{14}\ W/cm^2$): 2.9, 5.8, 8.8, 12, 17.5, 23, 29

aufzuspalten. Zu Beginn findet eine Tunnelionisation statt, danach wird das Elektron vom Laserfeld getrieben, wobei dieses durch Einfluss des Coulombpotentials nach dem Laserpuls vom Ionenrumpf in einen angeregten Zustand festgehalten wird. Bevor nun im nächsten Kapitel am Edelgas Helium gezeigt werden soll, dass dieser Einfang im Potential des Atoms durch Lösen klassischer Bewegungsgleichungen beschrieben werden kann, soll vorher noch die Doppelstruktur im Ortsbild der angeregten Argonatome untersucht werden.

3.3.2 Einfluss des Laser-Intensitätsprofils auf die Ortsverteilung

Die Ortsverteilung der schwereren Edelgasatome Argon, Krypton und Xenon (Abb. 3.8) zeigt eine charakteristische Doppelstruktur, die symmetrisch zum Koordinatenursprung, der Position der höchsten Laserintensität, liegt. Im folgenden Abschnitt wird daher der Einfluss des Volumeneffekts und der Intensitätsverteilung entlang des Laserstrahls auf den Anregungsprozess untersucht. Die Ausbeuten für neutrale angeregte Argonatome sind in Abbildung 3.19 ortsaufgelöst dargestellt. Bei zunehmender Intensität bildet sich die bereits erwähnte Doppelstruktur heraus, wobei in der Mitte am Ort des Laserfokus weniger Ar* entsteht. Dieses Minimalsignal bleibt ab einer bestimmten Intensität annä-

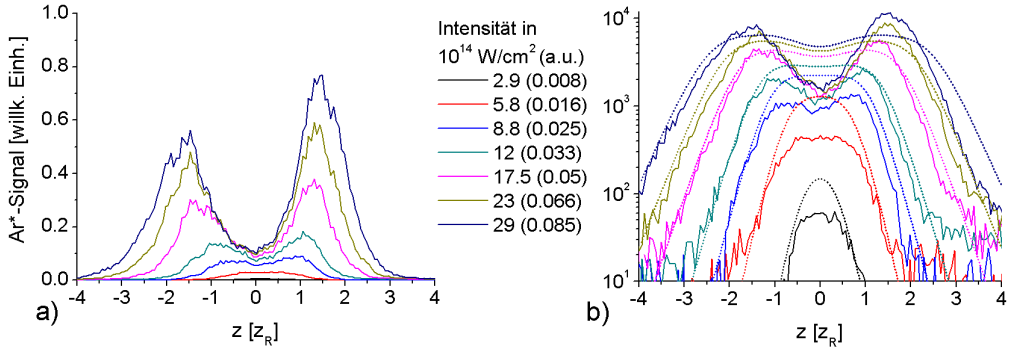

Abbildung 3.20: Ausbeute angeregter Argonatome entlang der Laserstrahlachse (in Einh. der Rayleighlänge) bei verschiedenen Intensitäten. Rechts sind in log. Skalierung die gemessenen Ausbeuten und errechnete ADK-Raten dargestellt.

hernd konstant auf derselben Höhe, während die Signalflanken proportional zur Intensität an Höhe und Ausdehnung entlang der Laserachse (z-Achse) zunehmen. Abbildung 3.20a, die eine Projektion der Daten aus Abb. 3.19 auf die z-Achse zeigt, verdeutlicht dieses Verhalten.
Als erster Ansatz zur Quantifizierung der Ar*-Ausbeute werden die Raten gemäß der ADK-Theorie (2.15) herangezogen, da nach der Analyse der Gesamtausbeute von Ar* und der Ionisationsrate (Abb. 3.16) die Intensitätsabhängigkeit beider Prozesse vergleichbar ist. Der Intensitätsverlauf entlang des fokussierten Laserstrahls ist gegeben durch

$$I(r,z) = I_{peak} \cdot \frac{1}{1+(z/z_R)^2} \cdot e^{-\frac{2r^2}{w_0^2(1+(z/z_R)^2)}} \tag{3.22}$$

wobei w_0 der Strahltaillenradius (hier ca. 16µm) und z_R die Rayleighlänge (1mm für $w_0 = 16\mu m$) ist. Zur Bestimmung der Anzahl angeregter Atome im Fokusbereich des Laserpulses sind Ratengleichungen mit Formel 2.15 als Übergangsrate zu lösen. Einen wesentlichen Anteil an der Doppelstruktur hat der Volumeneffekt bei der Anregung, der für die Ionisation von Gasatomen mit intensiven Laserpulsen bereits seit längerem bekannt ist [51]. Der fokussierte Laserpuls durchläuft ein annähernd homogenes Gasvolumen an Argonatomen. Die Anzahl angeregter Atome ergibt sich dementsprechend unter anderem aus dem Schnittvolumen von Laserstrahl und Gasstrahl. Durch die Fokussierung ist das Volumen jedes Intensitätsintervalls $I_{max} > I \geq I_0$ im Laserfokus, wo die Intensität am höchsten ist, am kleinsten und nimmt mit größer werdendem Abstand vom Fokus zu. In Abbildung 3.21 sind einige Volumina, die von Isointensitätslinien begrenzt werden, als

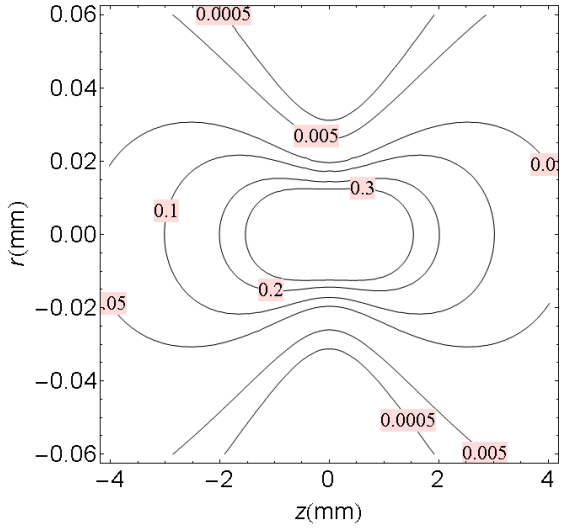

Abbildung 3.21: Intensitätsprofil eines fokussierten Gaußstrahls ($w_0 = 16\mu m, \lambda = 800nm, z_R = 1mm$) nach Formel 3.22. Die Konturbeschriftungen geben die Intensität der Konturlinie bezüglich der Spitzenintensität I_{peak} an.

Konturfunktionen von Radius r und Strahlachse z gemäß (3.22) dargestellt. Bei geringen Spitzenintensitäten werden nur in einem kleinen Volumen um den Laserfokus Atome in angeregte Zustände gebracht; bei höheren Spitzenintensitäten reicht jedoch auch die Intensität in den Außenbereichen aus, um ein messbares Signal an angeregtem Argon zu erzeugen. Das Volumen dieser Intensitätsbereiche ist, wie man in Abb. 3.21 erkennt, größer, demnach ist auch die Anzahl an angeregten Atomen höher: Es stehen mehr Argonatome für den Anregungsprozess zur Verfügung als im Fokus. Das Volumen einer solchen Isointensitätslinie wird mit

$$V(x) = 2\pi w_0^2 z_R * \int \left(ln\frac{1}{1+x^2} - ln\frac{I_0}{I_{peak}} \right) (1+x^2) dx \tag{3.23}$$

berechnet. Die Gesamtanzahl steigt bei zunehmender Intensität in den Außenbereichen damit stärker an als im Zentrum. Ein einfaches Ratengleichungssystem für die Bevölkerung angeregter Zustände ist gegeben durch

$$\begin{aligned} \dot{N}_0(t) &= -R_{ADK} \cdot N_0(t) \\ \dot{N}_A(t) &= R_{ADK} \cdot N_0(t) \end{aligned} \tag{3.24}$$

wobei $N_0(t)$ die Besetzung des Grundzustands ($N_0(t=0) = 1$) und $N_A(t)$ die Besetzung des angeregten Zustands. R_{ADK} ist die aus Gleichung 2.15 bekannte ADK-Rate für

einfach ionisiertes Argon:

$$R_A = w_{ADK}(F = (F_{laser}(t)\sqrt{I(z_i, r_j, I_{peak})}), Z = 1, E_{ion} = 0.58) \tag{3.25}$$

Für jede Position z entlang des Laserstrahls und für jedes Volumenelement in radialer Richtung dr wird die lokale Feldstärke berechnet und damit die zugehörige ADK-Rate w_{ADK} gemäß Formel 2.15 bestimmt. Die Feldstärke $F = \sqrt{I}$ wird mit der zeitlichen Einhüllenden der Laserfeldstärke $F_{laser}(t)$ multipliziert, um die zeitliche Änderung der Spitzenintensität I_{peak} bei einem Laserpuls von 40fs Halbwertsbreite (FWHM) mit einzubeziehen. Das Ionisationspotential E_{ion} für Argon beträgt in atomaren Einheiten 0.58. Das Gleichungssystem 3.24 wird gelöst und die Populationszahlen N_A bei einer festgelegten Zeit t=6000 a.u. (150fs) über die radiale Komponente integriert. Die Integrationszeit ist so gewählt, dass der Laserpuls bereits das System durchlaufen hat, die Zerfallsprozesse während der Flugzeit jedoch noch keinen Einfluss auf die Besetzung haben. Die so berechneten Ausbeuten für die einzelnen Spitzenintensitäten werden mit einem festen Faktor bezüglich der Messdaten skaliert und sind in Abbildung 3.20b als gepunktete Linien eingezeichnet. Ein ähnliches Verfahren wurde bereits von [52, 53] zur ortsaufgelösten Abbildung der Ionenproduktion von Argon und Xenon entlang der Laserstrahlachse angewandt. Es wird als *Intensity Selective Scanning (ISS)* bezeichnet. Bei dieser Methode wird das Isointensitätsvolumen 3.23 in Intervalle mit der Länge dx eingeteilt und die Ionenrate in jedem Volumenelement jedes Intensitätsbereichs berechnet. Für eine Berechnung der Ar*-Ausbeute über Ratengleichungen sind jedoch Raten gleich großer Volumenelemente einfacher zu berechnen; hier wird daher der Volumenbereich 3.21 in Intervalle mit gleichen Volumen und nicht in solche mit konstanter Intensität aufgeteilt.
Der Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen zeigt eine Übereinstimmung in den Außenbereichen des Laserstrahls ($|z| > 1.5$). Die Messdaten zeigen allerdings eine Asymmetrie bezüglich des Fokus. Die Verschiebung des Verteilungsminimums im Fokus bei wachsenden Spitzenintensitäten (in Abb. 3.20a zu sehen) wurde für den Vergleich mit den Modellrechnungen aus den Messdaten herausgerechnet. Das Verteilungsminimum ist im Modell aufgrund des Volumeneffektes zwar vorhanden, aber zu gering ausgeprägt. Hier wird die Anregung von einem weiteren Prozess beeinflusst. Bei hohen lokalen Laserintensitäten ist zu erwarten, dass eine zunehmende Anzahl von Argonatomen ionisiert anstatt in einen angeregten Zustand überführt wird. Dies führt zu einer Unterdrückung des Anregungsrozesses. Zusätzlich werden auch Atome, die sich bereits in einem angeregten Zustand befinden, weiter ionisiert. Diese Konkurrenzionisation tritt bei steigender Intensität zuerst im Fokus auf und reduziert auf der Laserachse zunehmend die Anzahl angeregter Argonatome.
Die Ratengleichung 3.24 ist also um diese Prozesse zu erweitern. Dazu wird nun ein Kontinuumszustand $N_C(t)$ definiert, der die Population aller Zustände enthält, die nicht mit dem Grund- oder dem angeregten Zustand identisch sind. Das Gleichungssystem

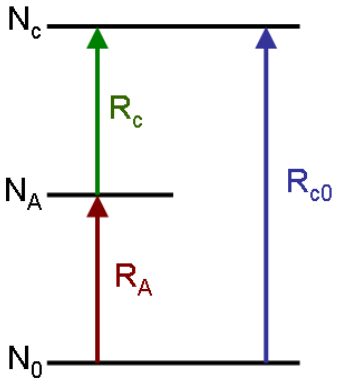

Abbildung 3.22: Skizze des Ratengleichungssystems (3.26), welches für die Simulation der Ortsverteilung von angeregten Argonatomen verwendet wird.

sieht dann wie folgt aus:

$$\begin{aligned} \dot{N}_0(t) &= -R_A \cdot N_0(t) - R_{c0} \cdot N_0(t) \\ \dot{N}_A(t) &= R_A \cdot N_0(t) - R_c \cdot N_A(t) \\ \dot{N}_c(t) &= R_{c0} \cdot N_0(t) + R_c \cdot N_A(t) \end{aligned} \tag{3.26}$$

N_0 bezeichnet wieder die Grundzustandsbesetzung des Ensembles, die zur Zeit $t = 0$ besetzt ist: $N_0(0) = 1$. Diese Besetzung wird mit einer Rate R_A in den angeregten Zustand N_A entvölkert. Nun ist auch die konkurrierende Ionisation aus dem Grundzustand direkt in den Kontinuumszustand N_c mit der Rate R_{c0} zu berücksichtigen. Gleiches trifft auch auf die Besetzungsdichte des angeregten Zustands N_A zu, aus welchem bereits angeregte Atome mit der Rate R_c nach N_c ionisiert werden können. Sowohl N_A als auch N_c seien bei $t = 0$ nicht besetzt.

Es verbleibt noch die Festlegung der Raten R_A, R_c und R_{c0}. Die vorangegangenen Untersuchungen zur Intensitätsabhängigkeit von Ar* und Argonionen können zur Festlegung der Rate R_A aus experimentellen Daten herangezogen werden. Mit dem Ergebnis aus Abb. 3.16 lässt sich diese als ADK-Rate von Ar^{1+} mit dem Verhältnis aus Ionen- und Ar*-Signal gewichtet ansetzen. Dabei ist jedoch zu beachten, dass die Messdaten auch den Zerfall der angeregten Zustände während der Flugzeit zum Detektor enthalten. Die eigentliche Besetzungszahl N_A ist direkt nach dem Laserpuls im Mittel um einen Faktor 10 höher:

$$R_A = 10 \cdot \frac{C_{Ar*}(I)}{C_{Ar+}(I)} \cdot w_{ADK}(F = (F_{laser}(t)\sqrt{I(z_i, r_j, I_{peak})}), Z = 1, E_{ion} = 0.58) \tag{3.27}$$

In Abb. 3.24 ist die aus dieser Rate resultierende Ausbeute an angeregten Atomen als gestrichelte Kurve eingezeichnet. Die Entvölkerung von N_A, die erst bei hohen Feldstärken signifikant wird, kann als Ansatz mit der ADK-Rate der nächsthöheren Ionisationsstufe Ar^{2+} beschrieben werden:

$$R_c = w_{ADK}(F = (F_{laser}(t)\sqrt{I(z_i, r_j, I_{peak})}), Z = 2, E_{ion} = 1.014) \tag{3.28}$$

Die Besetzungsreduktion der angeregten Zustände in ionische wurde nicht explizit untersucht, bei der Fehlerbetrachtung ist dies als mögliche Ursache für Abweichungen zu berücksichtigen. Dies gilt in einem noch stärkeren Maße für die Rate R_{c0}, da diese sämtliche Prozesse der Laserwechselwirkung umfassen muss, die nicht direkt zu einem angeregten Argonatom führen. Der dominante Prozess bei der Laser-Wechselwirkung ist die Einfachionisation der Atome, die direkte Entvölkerung des Grundzustandes in den Kontinuumszustand ist durch die ADK-Rate der ersten Ionisationsstufe gegeben. Andere Prozesse, wie Rekombination in den Grundzustand oder Mehrfachionisation, sind um einige Größenordnungen schwächer ausgeprägt und werden vernachlässigt.

$$R_{c0} = w_{ADK}(F = (F_{laser}(t)\sqrt{I(z_i, r_j, I_{peak})}), Ar^{1+}) \tag{3.29}$$

Löst man die Ratengleichungen 3.26 mit diesen Raten für jedes Intensitätselement $I(x_i, r_j, I_{peak})$ und summiert über die radialen Volumenintervalle, erhält man die zu erwartende Ausbeute an angeregten neutralen Argonatomen als Funktion von der Position entlang der Laserstrahlachse in Einheiten der Rayleighlänge $x = z/z_{Ray}$. Die Ergebnisse der Rechnungen im Vergleich mit den Messdaten zeigt Abbildung 3.23.

Das gemessene Profil der Ausbeute an Argonatomen entlang der Laserstrahlachse wird demnach von dem Modell aus den Ratengleichungen reproduziert, insbesondere der stärkere Einbruch bei den höchsten Intensitäten ist im Vergleich zu Abb. 3.20 nun vorhanden. Für Spitzenintensitäten $I < 1 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$ weicht das Modell allerdings von den Messungen ab, die simulierten Ausbeuten im Fokus sind zu groß. In den Außenbereichen der Verteilungen werden hingegen bei niedrigen Intensitäten korrekte Werte berechnet (orange Marker in Abb. 3.23). Bei höheren Spitzenintensitäten weicht das Modell von den experimentellen Ergebnissen bei den Verteilungsmaxima ab, die Anzahl angeregter Atome aus der Rechnung ist zu niedrig. Insgesamt liefern die Ratengleichungen jedoch eine Besetzungszahl, die mit den gemessenen Ausbeuten (Abb. 3.24 (■)) übereinstimmt. Es gibt zwei Ursachen für die Abweichungen: Die Asymmetrie der Verteilung um $z = 0$ ist auf einen reellen, nicht-gaußförmigen Laserpuls zurückzuführen. Dies trifft auch auf die zu großen Raten bei niedrigen Spitzenintensitäten zu. Denkbar ist eine Abweichung vom idealen Gaußprofil in radialer Richtung, so dass weniger Atome im Volumen mit ausreichender Intensität zur Verfügung stehen. Eine Modellierung mit ADK-Raten gelingt bei kleinen Spitzenintensitäten nicht, dies ist damit auch ein Hinweis auf einen weiteren Entvölkerungsprozess, der nicht berücksichtigt wurde. Die Abweichung bei den

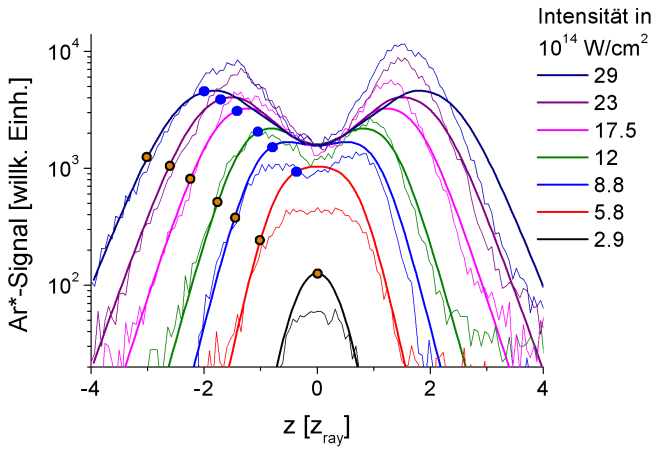

Abbildung 3.23: Ausbeute angeregter Argonatome entlang der Laserstrahlachse (in Einh. der Rayleighlänge) bei verschiedenen Intensitäten. Dünn gezeichnete Linien entsprechen den gemessenen Daten, die breiten Linien gleicher Farbe entsprechen der für die passende Intensität berechneten Werte. Die orangen Punkte markieren die Position gleicher Intensität auf der Laserstrahlachse ($I = 2.9 \cdot 10^{14}\, W/cm^2$), die blauen Punkte die Position der Intensität mit der maximalen Ar^*-Ausbeute ($5.2 \cdot 10^{14}\, W/cm^2$).

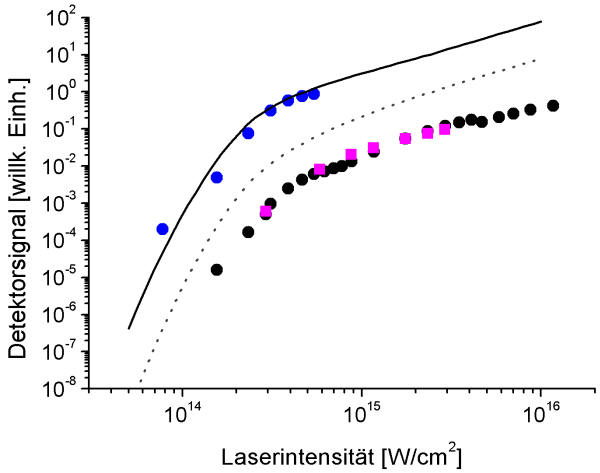

Abbildung 3.24: Gemessene Ionenausbeute für Ar^+(●) und $Ar*$ (●) im Vergleich mit den Modellrechnungen für Ar*-Produktion nach der Ratengleichung 3.26 (■). Eingezeichnet sind außerdem die aus dem ADK-Modell errechnete Ar^+-Ausbeute (−) sowie der Verlauf der Rate R_A ($\cdots$).

Verteilungsmaxima weist auf eine andere Entvölkerungsrate des angeregten Niveaus N_A hin. Eine Entvölkerung findet jedoch auf alle Fälle statt: Schaltet man in den Rechnungen die Rate R_c ab, ist das Minimum in den Rechnungen zu schwach ausgeprägt und wächst zudem mit zunehmender Laserintensität an, anstatt sich, wie in Abb. 3.20 zu erkennen ist, einem Maximalwert bei z=0 zu nähern.
Die vorhandenen Übereinstimmungen des entwickelten Modells mit den experimentellen Daten ergeben zusammengefasst folgenden Prozess: Im Volumen entlang der Laserstrahlachse werden gemäß einer Rate proportional zur ADK-Rate angeregte neutrale Argonatome erzeugt. Durch die Fokussierung des Laserstrahls sind die Volumina mit hinreichend hoher Intensität zur Ar*-Produktion vor und hinter dem Laserfokus größer und es entstehen mehr Atome in angeregten Zuständen (Volumeneffekt). Gleichzeitig finden auch Ionisationsprozesse statt, die die Anzahl von Ar*-Atomen reduzieren (konkurrierende Ionisation), entweder durch direkte Ionisation des neutralen Atoms im Grundzustand (Rate R_{c0}) oder durch Ionisation von Atomen, die sich bereits in einem angeregten Zustand befinden (Rate R_c). Beide Prozesse sorgen für eine starke Reduktion der Ausbeute an angeregtem neutralen Argon bei entsprechend hohen Intensitäten. Sowohl der Volumeneffekt als auch die konkurrierende Ionisation führen im Ortsbild des Detektorsignals zu dem charakteristischen Minimum im Laserfokus.

4 Erzeugung neutraler angeregter Heliumatome durch kurze Laserpulse

Im vorangegangenen Kapitel wurde die Anregung von Edelgasatomen in metastabile und Rydbergzustände untersucht. Unter anderem wurden festgestellt, dass die Ausbeute an angeregten Argonatomen bei verschiedenen Intensitäten eine den bekannten Ionenproduktion ähnliche Abhängigkeit aufweist. Darüber hinaus hat die Anregung der Argonatome eine Elliptizitätsabhängigkeit, die mit der eines Rückstreuprozesses (nichtsequentielle Ionisation) vergleichbar ist. Es liegt also nahe, das von *Corkum et al.* [10] entwickelte Rückstreumodell so zu erweitern, dass der Anregungsprozess über Tunnelionisation und Bindung des Elektrons im Coulombpotential [49] klassisch über eine Trajektorienberechnung für das Elektron beschrieben werden kann.
Das folgende Kapitel beschreibt die Messungen am Element Helium und die Entwicklung eines solchen semiklassischen Modells. Da Helium im Gegensatz zu den schwereren Edelgasen zumindest numerisch berechnet werden kann, ist ein Vergleich mit den Modellrechnungen möglich.

4.1 Messungen an Helium

Bevor ein theoretisches Modell für den Anregungsprozess von Helium entwickelt werden kann, ist zu prüfen, ob die für Argon gemessenen Abhängigkeiten von Intensität und Elliptizität sich auch bei Helium nachweisen lassen.

4.1.1 Polarisationsabhängigkeit

Über eine Messung der Polarisationsabhängigkeit der He*-Ausbeute lässt sich feststellen, ob die Anregung durch den Wiedereinfang eines Elektrons verursacht wird. Abbildung 4.1 zeigt diese Messung zusammen mit der Polarisationsabhängigkeit der He^+-Produktion. Der Abfall der He*-Ausbeute für wachsendes ϵ ist deutlich steiler als der Abfall der Produktion für einfach ionisiertes Helium und daher ein klares Indiz für einen Prozess, bei dem das Elektron nur durch linear polarisierte Laserfelder zum Ionenrumpf zurückgetrieben wird. Dieses Verhalten wurde auch bei den anderen Prozessen höherer Ordnung (HHG und NSDI) beobachtet [54]. Es ist dabei jedoch zu beachten, dass die Intensität des Laserpulses beim Wechsel von linearer zu zirkularer Polarisation bei gleicher Pulsenergie halbiert wird. Nach Gleichung (2.17) reduziert sich dann auch die Ionisations- bzw.

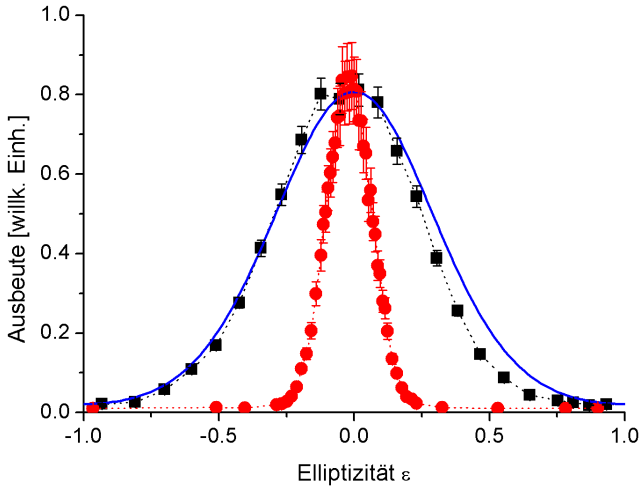

Abbildung 4.1: Abhängigkeit der Ausbeute von Helium-Ionen (■) und neutralen angeregten Heliumatomen (●) von der Elliptizität des Laserpulses. Die Intensität für die He*-Messung beträgt $4 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ und für die He^+-Messung $6 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$. Die Ausbeuten sind auf den Wert für $\epsilon = 0$ (lineare Polarisation) normiert. (-) zeigt die Abhängigkeit der Tunnelionisationsrate nach Gleichung 2.18 für He^+ bei einer Intensität von $6 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ bei $\epsilon = 0$.

Anregungsrate. Mithilfe der Formel 2.18 kann die Abhängigkeit der Tunnelionisation von der Elliptizität berechnet werden. Hält man die Energie des Laserpulses analog zum Experiment konstant, entspricht die Ionisationsrate mit 2.18 dem Verlauf der He^+-Daten in Abb. 4.1. Obwohl der Abfall der Kurve zu $\epsilon \to 1$ durch diese Vorgehensweise stärker gewichtet wird, belegt der direkte Vergleich der Messungen von He* und He^+ dennoch einen Wiedereinfang des Elektrons bei den neutralen He*-Atomen.

4.1.2 Intensitätsabhängigkeit der Produktion angeregter Heliumatome

Die Polarisationsabhängigkeit ist bereits ein starker Hinweis, dass der Prozess der Anregung von Helium durch einen kurzen Laserpuls ein mit der Erzeugung höherer Harmonischer (HHG) und der nichtsequentiellen Mehrfachionisation (NSMI) vergleichbarer ist, und der mit einer Rückbeschleunigung des getunnelten Elektrons zum Ion erklärt werden kann. Bei den letztgenannten Prozessen ist die Abhängigkeit der Ionen- bzw. Photonenausbeute von der Laserintensität eine wichtige Messgröße zur Charakterisierung des Effektes. Daher wird nun zunächst die Ausbeute an neutralen angeregten Heliuma-

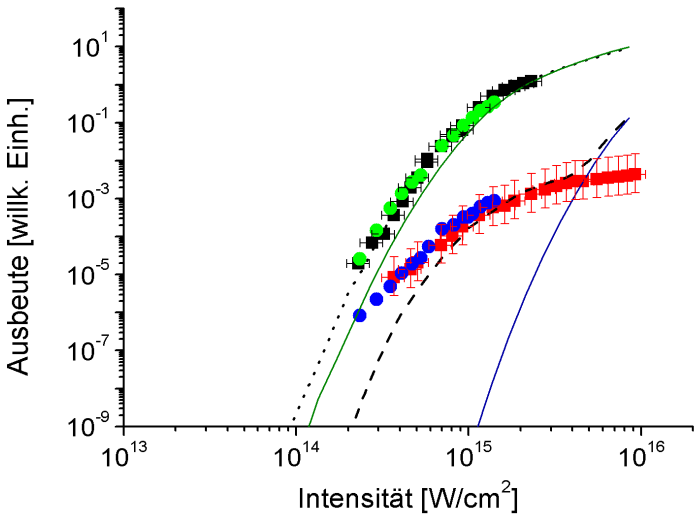

Abbildung 4.2: Gemessene Ausbeute an He^+-Ionen (■) und neutralen angeregten Heliumatomen (■) in Abhängigkeit von der Laserintensität. Ebenfalls eingezeichnet sind die Daten aus [55]: He^+:(●), He^*:(●) nach Korrektur der Intensitätsskala (s. Text). Die schwarzen Linien sind die aus [9] entnommenen Ausbeuten für einfach (· · ·) und zweifach (– – –) ionisiertes Helium. (–) und (–) zeigen die aus den ADK-Raten errechneten Ausbeuten für ein- und zweifach ionisiertes Helium.

tomen als Funktion der Laserintensität experimentell untersucht und eine Zuordnung zu bereits bekannten Ionisationsausbeuten vorgenommen. Die Vergleichswerte für die Raten der Einfach- und Doppelionisation sind [9] entnommen. Außerdem wurden die Ausbeuten nach dem ADK-Modell (2.15) mittels Ratengleichungen berechnet.
In Abbildung 4.2 ist das Ergebnis einer intensitätsabhängigen Messung der Produktion von Heliumionen und angeregten Heliumatomen dargestellt. Dazu wird die Pulsenergie des linear polarisierten Laserstrahls variiert und es werden gleichzeitig die am MCP-Detektor gemessenen He^+-Ionen und He*-Atome gezählt. Dabei wurde vorausgesetzt, dass Ionen und neutrale Atome mit der gleichen Effizienz vom MCP detektiert werden. Da die MCP-Detektoreffizienz für neutrale angeregte Atome nicht genau bekannt ist, wird für die He*-Ausbeuten eine Messungenauigkeit von einer Größenordnung angesetzt. Zum Abzug der Ionen in Richtung des MCP-Detektors wird der Plattenstapel aus drei Feldplatten eingesetzt; der Gasstrahl wird durch die 2mm-Lochblende transversal zusätzlich begrenzt. Aus Pulsenergie, Pulsdauer (in diesem Fall konstant 40fs) und der Strahltaille kann mit 3.7 die Laserintensität bestimmt werden. Durch Messungenauigkeiten bei Bestimmung der Strahltaille und genauer Fokusposition ist die Intensität in Abb.

l	s	p	d	f	g	h	i	j	k	l>8
in %	1.7	3	1.1	0.58	0.33	0.22	0.17	0.14	0.12	0.11

Tabelle 4.1: Besetzungsverhältnis zwischen dem metastabilen $1s2s\,^1S$-Zustand und dem $1s^2\,^1S$-Zustand von Helium

4.2 mit einem relativen Fehler von 15% behaftet. Die ermittelten Ausbeuten werden mit den Literaturdaten und den berechneten Ausbeuten aus dem ADK-Modell verglichen. Man erkennt zunächst, dass die gemessenen Ionenausbeuten mit den Literaturdaten für He^+ übereinstimmen. Die Ausbeute für He^+ nach dem ADK-Modell liegt für Intensitäten unterhalb der Volumensättigung etwas unterhalb der Messwerte. Dies ist konsistent mit den Ergebnissen aus [9] und [50]. Die Produktion neutraler angeregter Heliumatome beträgt nach 4.2 etwa zwischen 1 und 0.1% der He^+-Ausbeute, eine Kniestruktur wie in den He^{2+}-Ausbeuten fehlt. Die He^*-Raten zeigen bei hohen Laserintensitäten ($> 3 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$) den Effekt der Volumensättigung.
Die Daten aus der Veröffentlichung [55], welche ebenfalls in 4.2 eingezeichnet sind, wurden zur Anpassung an die dort berechneten Daten in der Intensität skaliert. Die Ursache für diese Verschiebung, der Einfluss der Intensitätsverteilung, ist nach der Veröffentlichung noch einmal genauer untersucht worden mit dem Ergebnis, dass bei diesen Daten die He^*- und He^+-Ausbeuten nicht im Laserfokus, sondern ca 1.5 bis 2 Rayleighlängen davor gemessen wurden. Die Intensitäten, die aus den Laserparametern bestimmt wurden, sind damit mit einem Faktor von ca. 0.2 zu skalieren, um die korrekte Laserintensität im Gasstrahl zu erhalten. Unter Berücksichtigung dieser Anpassung stimmen die Ergebnisse auch mit den Daten aus [55] überein, so dass sich bei allen intensitätsabhängigen Messungen nun ein konsistentes Bild ergibt.
Die Daten für die Anregung von Heliumatomen enthalten noch die Detektionseffizienz, die angeregten Atome werden auf dem Weg zum Detektor zum Teil in den Grundzustand zerfallen. Mit der Ratengleichung aus Abschnitt 3.2.3 kann die Nachweiseffizienz abgeschätzt werden, indem der Anteil der Atome berechnet wird, der nach der Flugzeit sich noch in einem Rydbergzustand befindet oder in den ebenfalls nachweisbaren metastabilen $1s2s\,^1S$-Zustand zerfallen ist. Das Heliumatom ist allerdings ein Zwei-Elektronen-System und somit die Lösung der Schrödingergleichung nicht separabel. Die Übergangsraten werden deswegen numerisch ermittelt und sind tabelliert zum Beispiel in [56] verfügbar. Ein angeregter Zustand des Heliumatoms kann direkt in den metastabilen Zustand zerfallen oder über eine Zerfallskaskade. Durch Lösen von (3.17) mit den entsprechenden Übergangsraten findet man, dass die Wahrscheinlichkeiten, im $1s2s^1S$-Zustand zu enden, nahezu unabhängig von der Hauptquantenzahl sind, dafür aber mit wachsender Bahndrehimpulsquantenzahl stark abnehmen. Das Besetzungsverhältnis für die Übergänge $1sn'l'^1S \rightarrow 1s2s^1S$ im Vergleich zum Zerfall in den Grundzustand ist in Tabelle 4.1

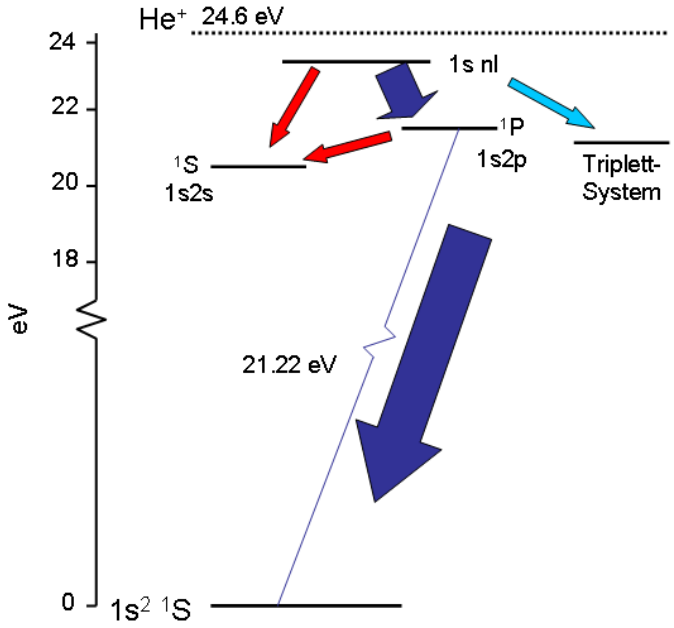

Abbildung 4.3: Skizze des Termschemas von Helium mit den energetisch niedrigsten Zuständen. Die Breite der Pfeile symbolisiert die Übergangswahrscheinlichkeiten in den Grund- bzw. metastabilen Zustand.

Übergang	Rate $[10^8\ s^{-1}]$	Verhältnis zum Singulett-Übergang
$2p\,^1S\ -\ 3d\,^3P$	$1.2 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-3}$
$10f\,^1F\ -\ 3d\,^3D$	$6.7 \cdot 10^{-4}$	$1/4$
$9g\,^1G\ -\ 4f\,^3F$	$6.9 \cdot 10^{-5}$	$1/32$
$10h\,^1H\ -\ 5g\,^3G$	$1.5 \cdot 10^{-5}$	$1/53$
$9i\,^1I\ -\ 6h\,^3H$	$1.3 \cdot 10^{-5}$	$1/73$

Tabelle 4.2: Übergangsraten zwischen Singulett- und Triplettzuständen in Helium (Auswahl aus [57]).

angegeben. Abbildung 4.3 zeigt schematisch die Übergangswahrscheinlichkeiten in den metastabilen und den Grundzustand: Falls die Zerfallskaskade über den $1s2p$-Zustand läuft, zerfallen fast alle Atome in den Grundzustand und nicht in das nachweisbare metastabile Niveau.

Bei Übergängen in das Triplettsystems entfällt diese Aufteilung, da im Gegensatz zum Singulettsystem bei Heliumatomen im Triplettsystem der Grundzustand mit dem

metastabilen $1s2s\ ^3S$-Niveau identisch ist. Alle Atome, die sich in diesem Zustand befinden, erreichen damit auch den Detektor in einem nachweisbaren Zustand. Die Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen den beiden Systemen wurden berechnet und sind in [57] tabelliert verfügbar. In Tabelle sind einige Übergänge vom Singulett- ins Triplettsystem mit den dazugehörigen Übergangsraten aufgeführt. Man sieht, dass die Übergangsraten vom Singulett- ins Triplettsystem nicht vernachlässigbar sind und insbesondere der $10f\,^1F - 3d\,^3D$-Übergang ein Viertel der Übergangswahrscheinlichkeit des $10f\,^1F - 3d\,^1D$-Übergangs hat. Insgesamt werden etwa 1% der nach dem Laserpuls vorhandenen He^*-Atome bei der Zerfallskaskade in das Triplettsystem abzweigen, die damit von der gleichen Bedeutung sind wie die nachgewiesenen Singulettzustände.

4.2 Verhinderte Ionisation und Bildung hochangeregter Zustände

Die ersten Messergebnisse an Helium haben gezeigt, dass der Prozess der Anregung durch einen kurzen Laserpuls physikalisch mit dem Wiedereinfang eines zuvor durch Tunnelionisation freigesetzten Elektrons erklärt werden kann. Vor allem die Polarisationsabhängigkeit stützt diese These. Die hiermit verwandten Sekundärprozesse NSDI und HHG sind entweder mit der Ionisation der beteiligten Atome oder deren strahlende Rekombination in den Grundzustand verbunden. Bei einem Wiedereinfang eines Elektrons im Coulombpotential findet keine Streuung am Kern statt und das Atom ist nach der Wechselwirkung mit dem Laserfeld elektrisch neutral. Die kinetische Energie des Elektrons aus dem Beschleunigungsprozess ist in dem angeregten Zustand enthalten. Dieser Prozess, der im folgenden als *Verhinderte Tunnelionisation (Frustrated Tunneling Ionisation, FTI)* bezeichnet werden soll, stellt ein neues, semiklassisches Modell für das Auftreten von Rydbergzuständen nach Wechselwirkung von Atomen mit intensiven Laserfeldern dar.

4.2.1 Der FTI-Prozess: Erweiterung des Rückstreumodells

Der folgende Ansatz zur quantitativen Erklärung der FTI ist eine Ergänzung des Rückstreumodells [10] und bietet ein semiklassisches Bild des FTI-Prozesses, der in die bereits bekannten Prozesse HHG, NSDI und ATI eingereiht werden kann. Mittels einer Monte-Carlo-Simulation werden klassische Elektronentrajektorien der Beschleunigung durch das Feld des Lasers errechnet mit dem Ziel, festzustellen, bei welcher Phase des Laserfeldes das Elektron zum Ionenrumpf zurückkehrt und in einen gebundenen Zustand eingefangen wird. Des Weiteren wird die Energie und damit der quantenmechanische Zustand des Elektrons nach dem Wiedereinfang bestimmt, woraus sich eine Zustandsverteilung ableiten lässt. Ausgangspunkt ist der Tunnelprozess des Elektrons, das nach einer Zeit t_{ion}, die einer Phase ϕ_{ion} des elektrischen Feldes entspricht, aus dem Atom tunnelt. Die statistische Verteilung dieser Startzeit liefert 2.15

$$w_0 \propto \left(\frac{2(2E_b)^{3/2}}{F(t_{ion})} \right)^{\frac{2Z}{\sqrt{2E_b}}-|m|-1} e^{-\frac{2(2E_b)^{3/2}}{3F(t_{ion})}} \tag{4.1}$$

Dem Coulombpotential des Atoms $V(r) = \frac{-1}{\sqrt{r^2+\alpha}}$ ist ein linear polarisierter Laserpuls überlagert

$$F(t) = F_0 e^{-(t-t_0)^2/t_b^2} sin\, \omega t \tag{4.2}$$

wobei t_b die Pulsbreite des Gaußpulses und t_0 ein Offsetparameter ist. Der Parameter α bestimmt die „Weichheit“ des Coulombpotentials an der Stelle der Singularität $r = 0$ und verhindert numerische Probleme bei der Simulation. Nach [58] liegen übliche Werte für

α zwischen $\alpha = 0.5$ und $\alpha = 2$. Soweit nicht anders angegeben, ist in den nachfolgenden Rechnungen $\alpha = 0.01$ gesetzt, um den Einfluss dieser zunächst als numerischen Hilfskonstante zu minimieren. Der Einfluss des Parameters α und seine physikalische Bedeutung wird im Abschnitt 4.2.2 separat diskutiert.
Das Elektron befindet sich direkt nach dem Tunnelprozess (nach der Zeit t_{ion}) am Ort $\vec{r}_{tun}(t_{ion}) = (x_{tun}(t_{ion}), y_{tun}(t_{ion}) = 0, z_{tun}(t_{ion}) = 0)$ und hat entsprechend dem Tunnelmodell einen Anfangsimpuls $p_\perp = \sqrt{p_y^2(t_{ion}) + p_z^2(t_{ion})}$ senkrecht zur Polarisationsachse des Lasers, jedoch keinen in x-Richtung ($p_x = 0$). Die Tunnelwahrscheinlichkeit eines Elektrons mit Lateralimpuls $p_\perp$ kann nach [59] beschrieben werden durch

$$w_\perp \propto e^{-p_\perp^2 \frac{\sqrt{2E_b}}{F(t_{ion})}} \tag{4.3}$$

Die x-Position x_{tun} erhält man für $Z = 1$ aus dem Sattelpunktmodell 2.13

$$x_{tun} = \frac{E_b + \sqrt{E_b^2 - 4F(t_{ion})}}{2F(t_{ion})} \tag{4.4}$$

Mit diesem Parametersatz lassen sich Newton-Bewegungsgleichungen für die Elektronenbahn (in atomaren Einheiten) aufstellen.

$$\begin{aligned} \ddot{x}(t) + \frac{x(t)}{(r^2+\alpha)^{3/2}} - F_0\, e^{-(t-t_0)^2/t_b^2}\, sin\, \omega_L t = 0 \\ \ddot{y}(t) + \frac{y(t)}{(r^2+\alpha)^{3/2}} = 0 \\ \ddot{z}(t) + \frac{z(t)}{(r^2+\alpha)^{3/2}} = 0 \end{aligned} \tag{4.5}$$

Für die Simulation werden nun zufällig eine Startzeit und ein Lateralimpuls gemäß den Wahrscheinlichkeiten 4.1 und 4.3 ausgewählt und die Bewegungsgleichungen integriert. Die Verteilung der Startzeit t_{ion} liegt im Bereich der Maximalamplitude des Laserfeldes. Liegt ein gebundener Zustand vor, ist die Gesamtenergie des Elektrons $T = v^2/2 + V(r)$ nach einer Evaluationszeit t_{eval} negativ und über $T = -\frac{1}{2\nu^2}$ kann man dem Endzustand des Elektrons eine effektive Quantenzahl ν zuordnen, die durch Einsortieren der Energien in diskrete Zustände der Hauptquantenzahl n in der Quantenmechanik entspricht. Daher wird im Folgenden diese effektive Quantenzahl ν mit der n-Quantenzahl gleichgesetzt. Die Rechnung wird hinreichend oft wiederholt ($\sim 10^5$ Trajektorien wurden für eine Laserintensität errechnet), woraus sich einerseits eine Gesamtanzahl neutraler, angeregter Atome für verschiedene Intensitäten und andererseits auch eine Häufigkeitsverteilung der n-Zustände ergibt. Die Monte-Carlo-Simulation und die im folgenden vorgestellten Ergebnisse wurden neben der Veröffentlichung [55], welche sich hauptsächlich mit der

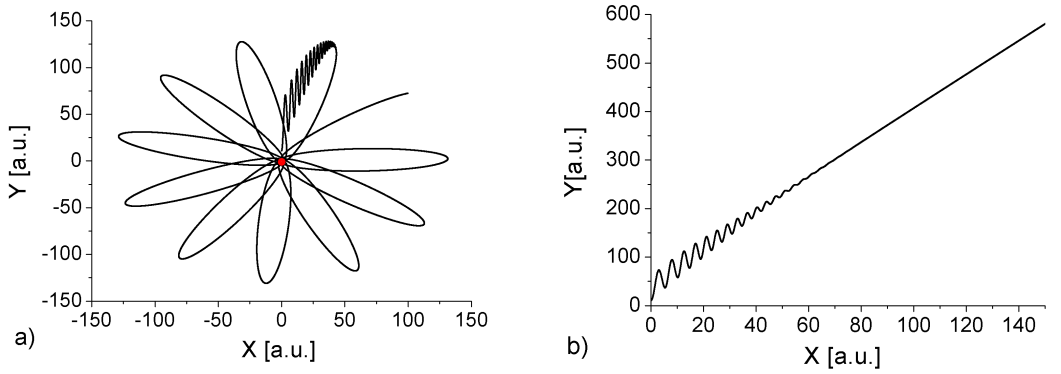

Abbildung 4.4: Berechnete Elektronentrajektorien (40 fs Laserpulsdauer bei $2 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$, $p_\perp = 0.05$): a) Gebundener Zustand ($t_{ion} = 90.43\frac{\pi}{\omega_L}$) b) Freies Elektron ($t_{ion} = 90.42\frac{\pi}{\omega_L}$)

experimentellen Beobachtung der FTI befasst, noch ausführlicher von Shvetsov-Shilovski et. al. in [60] untersucht und vervollständigt. [60] kommt bei etwas anderen Parametern zu ähnlichen Ergebnissen, insbesondere das Verteilungsmaximum der n-Quantenzahl bei niedrigen n wurde bestätigt. In Abbildung 4.4 sind als Beispiel eine Trajektorie eines gebundenen Zustandes und eines ungebundenen Zustandes dargestellt; die Zeichenebene ist die x-y-Ebene.

Abbildung 4.5a zeigt errechnete n-Verteilungen für verschiedene Laserintensitäten bei einer Pulsdauer von 40fs (FWHM) und einer Wellenlänge von 800nm ($\omega = 0.056\ a.u.$). Das Maximum der Verteilung liegt um $n = 8$ und ändert sich nur geringfügig mit der Laserintensität: $n_{max} \propto \sqrt{F}$. Dies lässt sich dadurch erklären, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit w_0 in der Nähe des Feldmaximums am größten ist und das Elektron dort nur wenig kinetische Energie aus dem Driftprozess aufnimmt. Die maximale radiale Auslenkung r_{max} skaliert mit $r_{max} = F/\omega^2$; mit dem Erwartungswert für den Radius eines Rydbergatoms $\langle r \rangle \propto n^2$ ergibt sich die oben genannte Feldabhängigkeit von n_{max}. Damit befindet sich das Elektron nach dem Laserpuls noch nahe dem Startpunkt, was beim Einfang hauptsächlich zu Rydbergzuständen mit niedrigen n führt. Die Gesamtanzahl von Atomen in einem angeregten Zustand nimmt mit steigender Laserintensität ab (4.5b) und beträgt etwa 13% der Ionenanzahl.

4.2.2 Einfluss von Phase und Querimpuls

Untersucht man den Einfangprozess systematisch in Abhängigkeit von den bisher statistisch gewählten Parametern Querimpuls $p_\perp$ und Startzeit t_{ion}, lässt sich eine 2D-Karte von Startphasen und Querimpulsen erstellen, bei denen ein Wiedereinfang des Elektrons möglich ist. Hierzu werden wieder Trajektorien errechnet, in diesem Fall

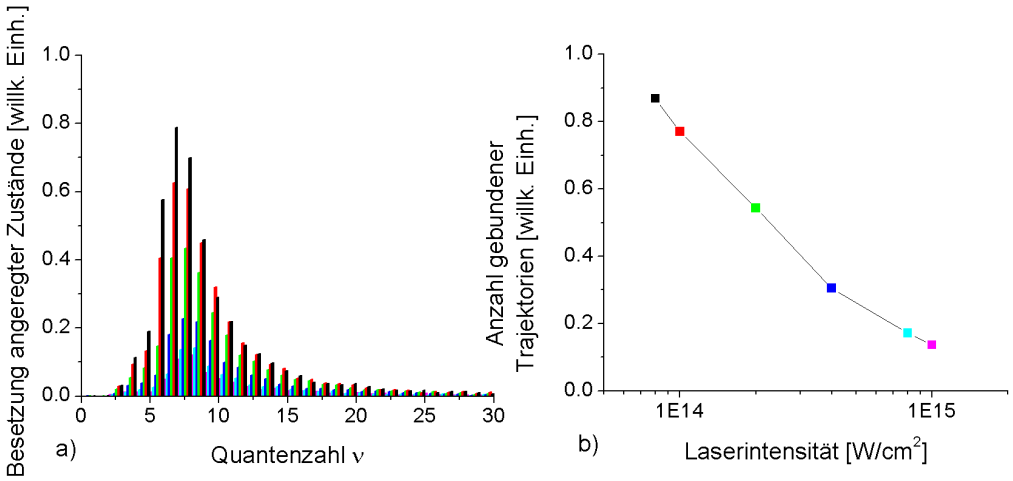

Abbildung 4.5: Berechnete Ausbeute an angeregten Atomen bei verschiedenen Intensitäten. a) Besetzung der angeregten Zustände b) Anzahl gebundener Trajektorien (relativ zu Gesamtanzahl der Trajektorien)

jedoch mit allen möglichen Kombinationen aus $p_\perp$ (-0.4 bis 0.4 a.u.) und t_{ion} ($90.4\frac{\pi}{\omega_L}$ bis $90.6\frac{\pi}{\omega_L}$). Nach $t_{eval} = 20000 a.u.$ wird die Gesamtenergie ausgewertet. Die daraus entstehende Matrix zeigt Abb. 4.6a) für lange 40fs-Pulse und Abb. 4.6b) für kurze 8fs-Pulse. Sowohl die Anzahl wiedereingefangener Elektronen als auch die dafür infrage kommenden Startzeit/Querimpuls-Kombinationen sind demnach abhängig von der Pulsdauer. Generell werden bei kurzen Laserpulsen zum einen mehr Elektronen mit gebundenem Endzustand festgestellt, zum anderen können auch Elektronen mit geringerem anfänglichen Querimpuls wiedereingefangen werden. Die Verteilung der Querimpulse, bei denen das Elektron eingefangen werden kann, weist eine scharfe obere Grenze auf, die durch die Gesamtenergie $T = \vec{p}^2/2 + V(r)$ bestimmt wird. Bei größer werdendem Impuls entfernt sich das Elektron weiter vom Kern und erfährt somit ein immer schwächeres Coulombpotential. Die Bedingung $T < 0$ für einen gebundenen Zustand begrenzt also die möglicher Werte für $p_\perp$. Die Pulsdauerabhängigkeit ist ebenfalls mit einer Zunahme des Querimpulses des Elektrons zu erklären. Je mehr Perioden das anliegende Laserfeld durchläuft, desto öfter wird das Elektron Richtung Kern zurückgetrieben. Dadurch erhöht sich die Wahrscheinlichkeit einer Streuung mit Impulsübertrag auf das Elektron; dieses wird bei hinreichend großem hinzugewonnenem Impuls dann nicht mehr vom Ionenrumpf eingefangen. Diese Kollisionsrate ist insbesondere für Elektronen mit geringem Anfangsimpuls hoch, was sich an der lokalen Abnahme der gebundenen Trajektorien im Innenbereich der 2D-Verteilung in Abb. 4.6b) zeigt.
Die Wahl des Parameters α, der die Abweichung des atomaren Potentials vom Cou-

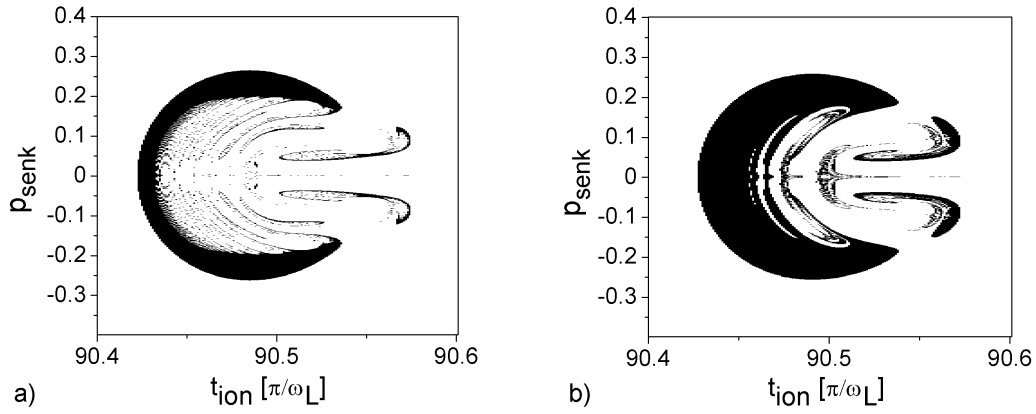

Abbildung 4.6: Zweidimensionale Verteilung der wiedereingefangenen Elektronen in Abhängigkeit von der Startzeit t_{ion} und dem Querimpuls $p_\perp$. Simulation für einen linear polarisierten Laserpuls bei $I = 2{*}10^{14} W/cm^2$ und $\omega_L = 0.056$ a.u., Pulsdauer: a) 40fs b) 8fs

lombpotential beschreibt, hat für kleine Anfangsquerimpulse einen Einfluss auf den Wiedereinfang. Bei großen Abweichungen vom Coulombpotential ($\alpha = 1$) können auch Elektronen eingefangen werden, für die $p_\perp < 0.01$ als Anfangsbedingung gewählt wurde. (roter Kasten in Abb. 4.7a). Die Elektronenbahnen (Abb. 4.7b) erfahren durch diese Abweichung des atomaren Potentials eine wachsende Periheldrehung, die sich aus den Keplerschen Gesetzen bei Aufhebung der Bahnentartung ergibt. Der Parameter α ist also nicht nur ein Korrekturfaktor für numerische Probleme, sondern beschreibt physikalisch auch die Aufhebung der l-Entartung bei schwereren Elementen als Wasserstoff. Für Helium, welches das leichteste Element nach Wasserstoff ist, kann $\alpha < 1$ gesetzt werden, da die Abweichung vom Coulombpotential noch nicht so groß ist.

Variiert man anstelle der Laserintensität die Wellenlänge des Laserpulses, ergibt sich die in Abbildung 4.8 gezeigte Besetzungsverteilung der Hauptquantenzahl. Die Gesamtzahl gebundener Zustände nimmt zu kleineren Frequenzen ab, dabei werden hauptsächlich die Besetzungen kleiner n aus der Verteilung entfernt. Das Maximum der n-Verteilung skaliert näherungsweise mit $1/\omega_L$. In der 2D-Verteilung (Abb. 4.9) wirkt sich dies im wesentlichen auf den Phasenbereich aus, in dem ein Einfang in angeregte Zustände möglich ist. Dieser ist bei 400nm um einen Faktor von 2.5 größer als bei 800nm. Da die ponderomotorische Energie (2.10) bei einer Wellenlänge von 400nm etwa nur ein Drittel von U_{pond} bei 800nm beträgt, erweitert sich zum einen der Bereich möglicher Startzeiten, zum anderen vergrößern sich auch die maximalen Querimpulse des Elektrons.

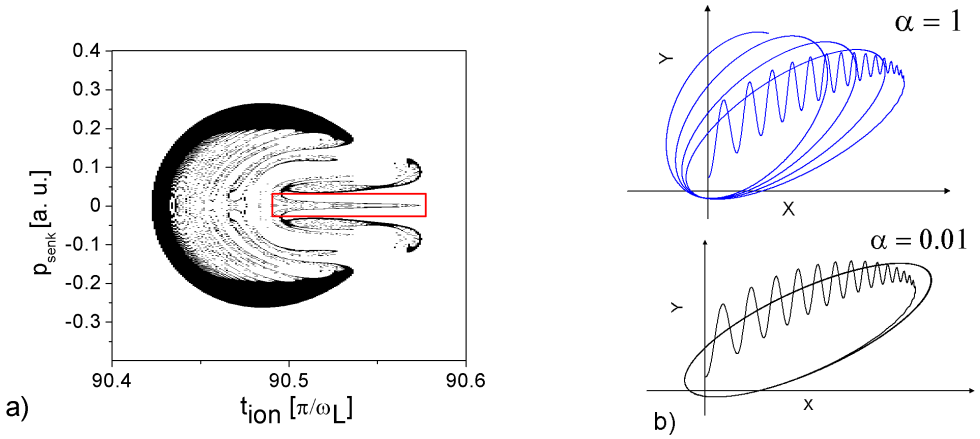

Abbildung 4.7: a) Zweidimensionale Verteilung der eingefangenen Elektronen bei $I = 2 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ und $40fs$ Pulsdauer(FWHM). Der Parameter für das Soft-Coulomb-Potential ist $\alpha = 1$. Der rote Kasten zeigt die zusätzlich zu Abb. 4.6a) gebundenen Trajektorien. b) Einfluss des Parameters α auf die Elektronentrajektorien aus der Bewegungsgleichung

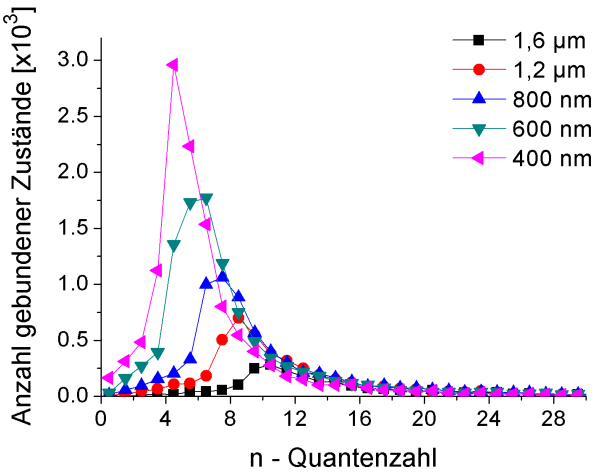

Abbildung 4.8: Besetzungsverteilung der n-Quantenzahl in Abhängigkeit von der Wellenlänge bei $I = 2 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ und $40fs$ Pulsdauer(FWHM)

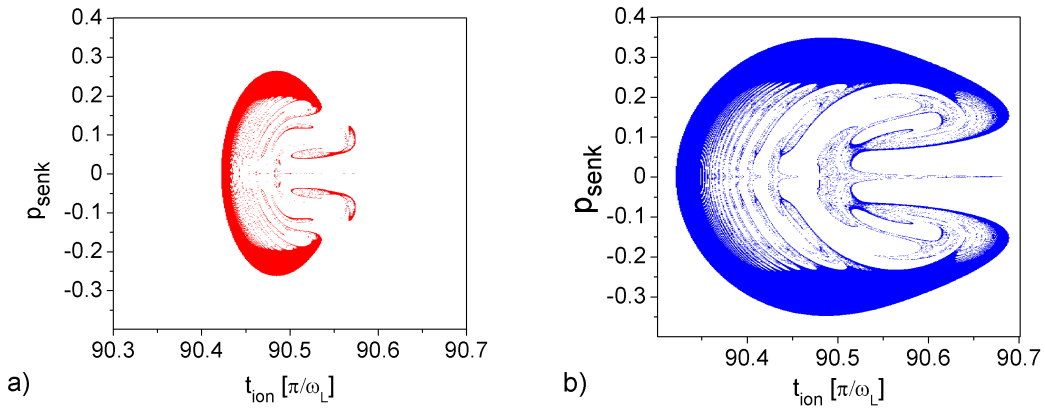

Abbildung 4.9: Zweidimensionale Verteilung der wiedereingefangenen Elektronen in Abhängigkeit von der Startzeit t_{ion} und dem Querimpuls $p_\perp$. Simulation für einen linear polarisierten $40fs$-Laserpuls bei $I = 2 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ und a) $\omega_L = 800nm$, b) $\omega_L = 400nm$

Die Wellenlängenabhängigkeit des Auftretens von angeregten neutralen Zuständen lässt sich also physikalisch mit den unterschiedlichen Energien erklären, die das getunnelte Elektron im oszillierenden Laserfeld aufnehmen kann.
Zusammenfassend ergibt sich aus der Simulationsrechnung des quasiklassischen Ansatzes der FTI folgendes Bild des Prozesses: Ein Elektron, das nach dem Tunnelprozess vom Laserfeld eines linear polarisierten Laserpulses beschleunigt wird, kann vom Ionenrumpf wieder eingefangen werden und ist dann vorwiegend in einem Rydbergzustand mit niedrigem n um $n = 8$ gebunden. Der Einfangprozess hängt wesentlich von der ponderomotorischen Energie und von der Startzeit (bezüglich der Phase des Laserfeldes) ab, da nur ein bestimmter Energiebereich den Wiedereinfang zulässt. Dieser ist nach oben durch die maximale Gesamtenergie des Elektrons und nach unten durch die Querimpulszunahme bei der Streuung am Kern begrenzt. Entscheidend ist für den Wiedereinfang, wie auch bei der quantenmechanischen Rechnung von *H.G. Muller* [49], das Vorhandensein des Coulombpotentials in den Rechnungen.
Da dieser Ansatz zur Modellierung der FTI ein semiklassischer ist (nur der Tunnelprozess ist quantenmechanischer Natur, die Trajektorien ergeben sich rein klassisch aus Newtonschen Bewegungsgleichungen), werden im folgenden Abschnitt die Ergebnisse mit einer quantenmechanischen Rechnung verglichen, die von A. Saenz an der Humboldt-Universität zu Berlin durchgeführt wurden.

4.3 Vergleich der semiklassischen Simulation mit quantenmechanischen Rechnungen

Ein theoretisches Modell sollte nicht nur Ergebnisse liefern, die zu den experimentellen Daten passen und diese erklären. Es muss auch mit den Ergebnissen anderer Modelle und Ansätze im Rahmen der eingebauten Näherungen und Vereinfachungen vergleichbar sein. Der theoretische Ansatz über Tunnelionisation mit ADK-Raten und klassischen Elektronentrajektorien ist also mit einem quantenmechanischen Modell zu vergleichen. Grundlage dafür ist die zeitabhängige Schrödingergleichung, die zur Berechnung der zeitabhängigen Wellenfunktion $\Psi(t)$ gelöst wird.

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi = \hat{H}\Psi \tag{4.6}$$

Rein analytisch ist dies bei Helium nicht möglich, es können entweder die Wellenfunktion beide Elektronen numerisch berechnet werden oder es wird angenommen, dass ein Elektron sich immer im Grundzustand befindet und nur das zweite höhere Zustände besetzen kann (*Single Active Electron (SAE) approximation*). Der Hamilton-Operator setzt sich aus dem feldfreien Operator für Elektronen $\hat{H}_0$ und dem Feldanteil $\hat{D}(t) = -\hat{A} \cdot \hat{p}/c$ zusammen:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{D}(t) \tag{4.7}$$

Die Schrödingergleichung 4.6 wird durch Wellenfunktionen $\Psi(t)$ gelöst, die eine Linearkombination aus zeitunabhängigen Wellenfunktionen Φ sind

$$\Psi(t) = \sum_i b_i(t)\Phi_i \tag{4.8}$$

Diese wiederum sind Lösungen der zeitunabhängigen Schrödingergleichung. Gleichung 4.6 lautet damit

$$i\frac{\partial}{\partial t}|b_k(t)\rangle = E_k|b_k(t)\rangle \; + \; \langle\Phi_k|\hat{D}(t)|\Phi_i\rangle\,|b_i(t)\rangle \tag{4.9}$$

Die Zeitabhängigkeit wird in die Koeffizienten verlagert, welche numerisch bestimmt werden. Das Verfahren ist in [61] für das H_2-Molekül beschrieben und wurde in abgewandelter Form auch bei den Rechnungen für das Heliumatom angewandt. Zur Bestimmung dieser Koeffizienten und damit auch der Vielteilchenwellenfunktion wird die als *Configuration Interaction (CI)*-Verfahren bekannte Methode (siehe z.B. [62]) verwendet. Bei der CI geht man davon aus, dass alle angeregten Zustände (nicht nur der Grundzustand) mit dem gesuchten Zustand des Atoms oder Moleküls wechselwirken und berücksichtigt werden müssen. Mathematisch gesehen setzt sich die Wellenfunktion Ψ aus einer unendlichen Summe von Slaterdeterminaten zusammen.
Die hier zum Vergleich herangezogenen Daten wurden in Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe von A. Saenz (*Humboldt-Universität Berlin*) erstellt. Sowohl eine SAE-

Rechnung als auch eine volle CI-Rechnung wurde für Intensitäten im Bereich 10^{14} bis $10^{15}\,W/cm^2$ durchgeführt. Die Pulsform des elektrischen Feldes ist eine cos^2-Einhüllende mit 20 Zyklen Breite (ca. 56fs), was mit den experimentellen Pulslängen (ca. 45fs FWHM) vergleichbar ist. Die Photonenenergie ist auf 1.55 eV gesetzt. Die Rechnungen beinhalten Zustände mit $n \leq 30$ und für jedes n Bahndrehimpulsquantenzahlen $0 \leq l \leq 20$, dies ergibt etwa 20000 CI-Zustände. Resultat jeder Rechnung ist dann eine Matrix mit den Besetzungszahlen für jeden Zustand $|n, l < n\rangle$. Durch Summation der Besetzungszahlen über l für jedes n erhält man die Verteilung gebundener Zustände, die direkt mit der MC-Simulation 4.5 verglichen werden können. In Abbildung 4.10 sind neben den MC-Daten das Ergebnis der SAE-CI-Kalkulation und der Zwei-Elektronen-CI-Rechnung dargestellt. Die Ergebnisse der CI-Rechnung zeigen wie die Monte-Carlo-Simulation ein Besetzungsmaximum bei $n \approx 8$. Ebenso nimmt die Besetzungsdichte zu höheren n stark ab. Des Weiteren fällt auf, dass die Daten der Einelektronen-Simulation (SAE) eine größere Übereinstimmung mit den Daten des semiklassischen Modells haben als die der Zweielektronen-Rechnung. Dies ist zu erwarten, da auch das semiklassische Modell aus Tunnelionisation und Trajektorienberechnung nur ein Elektron berücksichtigt, welches in angeregte Zustände eingefangen werden kann. Das zweite wird überhaupt nicht berücksichtigt.

Die Ausbeuten der Anregung für verschiedene Laserintensitäten aus den quantenmechanischen Rechnungen und der Monte-Carlo-Simulation sind in Abb. 4.11 dargestellt. Die CI-Daten für die einzelnen n-Quantenzahlen ergeben aufsummiert die Gesamtausbeute an angeregten Zuständen. Die Daten der semiklassischen Simulation (Abb.: 4.5) werden auf die Gesamtausbeute der Heliumionen normiert, welche ebenfalls mittels einer CI-Rechnung bestimmt wurde. Alle drei Ausbeuten zeigen ein vergleichbares Abfallverhalten, lediglich bei niedrigen Laserintensitäten ($I < 2 \cdot 10^{14}\,W/cm^2$) weicht das Ergebnis der SAE-Rechnung von den beiden anderen um mehr als eine Größenordnung ab. Die Gesamtausbeute im Verhältnis zur Ionisationsrate beträgt 20% bei niedrigen und noch etwa 10% bei hohen ($I < 10^{15}\,W/cm^2$) Laserintensitäten.

Eine Zerlegung der n-Besetzungsverteilung auf die einzelnen Drehimpulsquantenzahlen l ergibt einen Hauptanteil von l=5 bis l=8 (Abb. 4.12a) an der Gesamtverteilung mit einem ausgeprägten Abfall zu hohen Drehimpulsen. Das semiklassische Modell zeigt dasselbe Verhalten bei großen l, die Verteilungsmaxima liegen jedoch anders und bedingt durch den klassischen Ansatz der Bewegungsgleichungen werden die Auswahlregeln für Dipolübergänge in Atomen nicht berücksichtigt.

Das semiklassische Modell eines Tunnelprozesses mit anschließendem Elektronenwiedereinfang entlang einer Trajektorie liefert also mit rein quantenmechanisch berechneten Zustandsverteilungen vergleichbare Ergebnisse. Insbesondere das Maximum in der Besetzung der Hauptquantenzahl wird von beiden quantenmechanischen Ansätzen bestätigt. Die SAE-CI-Rechnung liefert aufgrund des Ein-Elektronen-Ansatzes eine größere Übereinstimmung mit dem FTI-Modell. Damit ist gezeigt, dass der entwickelte halbklassische Ansatz als theoretische Grundlage für eine Auswertung der im Experiment ermittelten

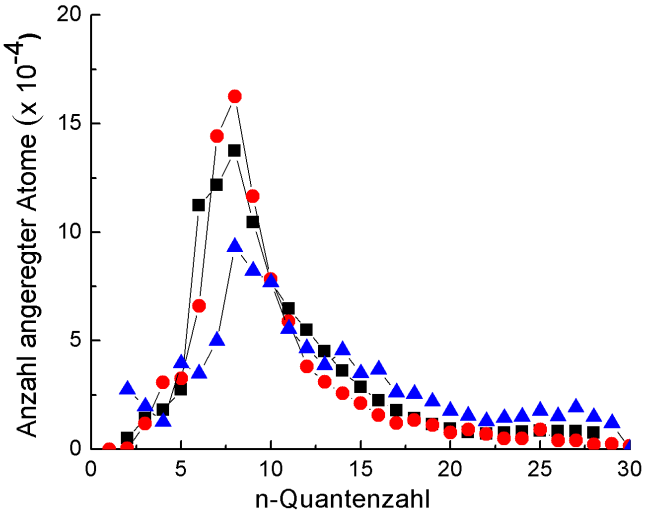

Abbildung 4.10: n-Verteilung in der Besetzung angeregter Zustände in Helium. (●) ist das Ergebnis einer MC-Simulation, (■) zeigt die Verteilung aus einer Quasi-Ein-Elektron- und (▲) einer Zwei-Elektronen-Rechnung (quantenmechanisch). Die Laserintensität beträgt $10^{15}\,W/cm^2$ und die Verteilung aus der MC-Simulation wurde für n=10 auf die Quasi-Ein-Elektron-Ergebnisse normiert.

Prozesse herangezogen werden kann. Dies beschränkt sich auf das Heliumatom, da schwerere Gase mit mehr als zwei Hüllenelektronen nicht mit vertretbarem Aufwand berechnet werden können. Die Gültigkeit des FTI-Modells bei diesen Atomen ist also auf experimentellem Weg zu ermitteln. Aufgrund der vergleichbaren Ergebnisse der Elliptizitätsabhängigkeit (Abb. 3.17) und der Intensitätsabhängigkeit (Abb. 3.16) bei angeregten Argonatomen aus dem vorangegangenen Kapitel liegt der Analogieschluß nahe, dass das FTI-Modell auch bei Mehrelektronensystemen gilt. Eine Erweiterung des Modells auf das Wasserstoffmolekülions H_2^+ ist hingegen möglich; dies wird in Kapitel 6 gezeigt.

4.4 Vergleich von Modell und Experiment

Im folgenden Abschnitt werden die in 4.2 erarbeiteten theoretischen Modelle mit den experimentellen Ergebnissen verglichen. Abbildung 4.13 zeigt die gemessenen Ausbeuten aus Abb. 4.2 im Vergleich mit den Ergebnissen der Monte-Carlo-Simulationen einerseits und den quantenmechanischen *Configuration-Interaction*-Rechnungen (CI) andererseits. Da der simulierte Intensitätsbereich nicht in den Bereich der Volumensättigung fällt,

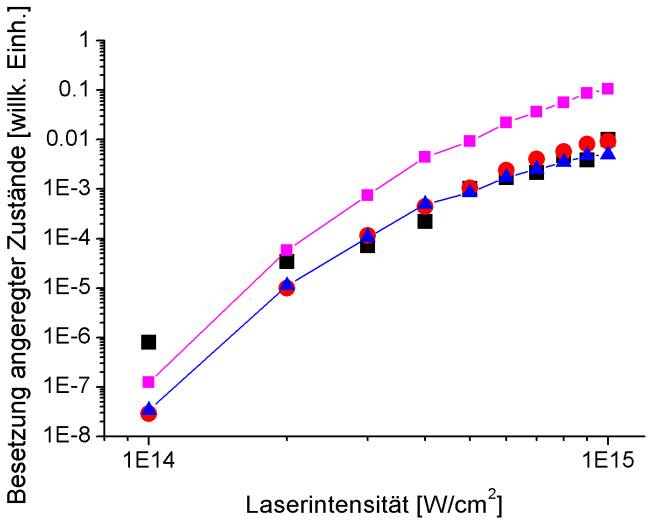

Abbildung 4.11: Vergleich der quantenmechanischen Rechnungen zur Neutralen-Ausbeute (Zwei-Elektronen-CI: (●), SAE: (■)) mit den Ergebnissen der MC-Simulation (▲) von $5 \cdot 10^4$ Trajektorien für einen 40fs-Laserpuls mit 1.55 eV Photonenenergie bei Intensitäten zwischen 10^{14} und $10^{15} W/cm^2$. (■) sind die durch CI berechneten Ionenraten.

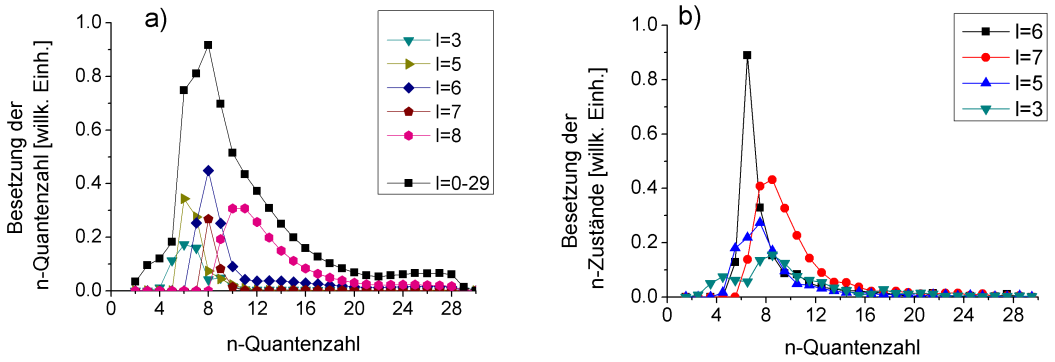

Abbildung 4.12: a) n-Verteilung in der Besetzung für verschiedene Bahndrehimpulse zwischen l=0 und l=9 bei einer Laserintensität von 10^{15} W/cm^2 aus einer quantenmechanischen SAE-CI-Rechnung. (■) ist die n-Verteilung mit allen Bahndrehimpulsen aus Abb.4.10. b) n-Verteilung für die angegebenen l-Quantenzahlen aus der Monte-Carlo-Simulation.

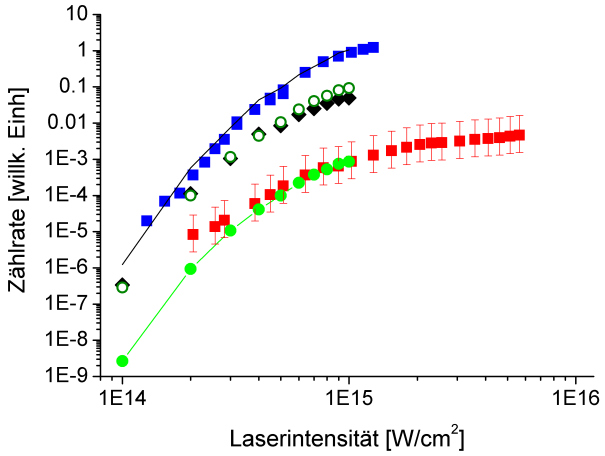

Abbildung 4.13: Vergleich zwischen den gemessenen Ausbeuten für Heliumionen (■), angeregte Heliumatome (■) und den Ergebnissen der Monte-Carlo-Simulation(⧫) sowie den Daten der *Configuration-Interaction*-Rechnung für He^* (○) und He^+(schwarze Linie). Die mit Lebensdauer und Detektionseffizienz korrigierten CI-Daten (●) sind ebenfalls eingezeichnet.

können gemessene Ausbeuten und berechnete Raten direkt miteinander verglichen werden. Die Intensitätsskala wird mit einem Faktor von 0.56 skaliert, um zu berücksichtigen, dass die Raten aus der ADK-Rechnung einen steileren Verlauf haben als die der quantenmechanischen CI-Rechnung. Die mit einer Zwei-Elektronen-CI-Rechnung ermittelten Raten der Ausbeute an Heliumionen stimmen dann mit den gemessenen Ionenausbeuten überein. Die Raten der angeregten neutralen Atome sind in den CI-Daten jedoch um zwei Größenordnungen zu hoch, da ein Teil der angeregten Atome während der Flugzeit in den Grundzustand zerfällt. Die Größenordnung der Abweichung ergibt sich aus der Lebensdauer der entstandenen angeregten Zustände. Sowohl in den CI-Rechnungen als auch in der Monte-Carlo-Simulation ist der Zerfall von Zuständen noch nicht enthalten. Zur Berücksichtigung der Lebensdauern der Rydbergzustände müssen die berechneten Zählraten mit einem Zerfallsfaktor skaliert werden. Mit dem Besetzungsverhältnis für jede l-Quantenzahl aus Tabelle 4.1 werden die bereits quantenmechanisch berechneten Verteilungen der Bahndrehimpulsquantenzahlen aus der CI-Simulation (Abbildung 4.12) wird für jede Intensität die Ausbeute an He^* skaliert. Damit ist der Zerfall der angeregten Zustände der Atome in den nicht nachweisbaren Grundzustand in der Zeit zwischen Laserwechselwirkung und Detektion berücksichtigt.
Rydbergzustände mit hohen Hauptquantenzahlen (n>20) und hohen l-Quantenzahlen haben eine Lebensdauer, die in der Größenordnung der Flugzeit liegt und werden

demnach direkt nachgewiesen. Auch dieser Anteil ist in den Simulationen nicht enthalten, trägt aber zur gemessenen Gesamtausbeute bei. Durch Feldionisation dieser langlebigen Rydbergzustände lässt sich dieser Teil experimentell bestimmen. Die Vorgehensweise und die Ergebnisse werden im nächsten Abschnitt diskutiert. Die Messungen ergeben einen Anteil von ca. 40% an Atomen in Rydbergzuständen mit n>18. Von allen anderen angeregten Zuständen, deren Lebensdauer kleiner ist als die Flugzeit, zerfallen etwa 1 Prozent in den metastabilen Zustand und werden nachgewiesen. Die Skalierung der Zwei-Elektronen-Simulationsdaten aus Abb. 4.13 mit den Zerfallswahrscheinlichkeiten und dem experimentell bestimmten Anteil an Rydbergzuständen mit n>18 zeigt eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Ausbeuten der angeregten Heliumatome.
Wie bereits im vorherigen Kapitel erwähnt, gelten diese Überlegungen nur für Helium im Singulettsystem, da Atome im Triplettsystem nicht in einen nicht-detektierbaren Grundzustand zerfallen können. Aus den Messdaten geht allerdings nicht hervor, in welchem System die Heliumatome nachgewiesen werden. Den Überlegungen aus Abschnitt 4.1.2 zufolge zweigen von allen angeregten Atomen während des Zerfalls etwa 1% in das Triplettsystem ab. Da hierfür die Übergangswahrscheinlichkeiten ebenfalls bekannt sind, können die Daten der CI-Rechnung analog zur Zerfallskaskade des Singulettsystems mit Hilfe dieser Raten skaliert werden. Die Rechnung ergibt, dass bei Berücksichtigung beider Zerfallskanäle die Zustände $1s2s\ ^1S$ und $1s2s\ ^3S$ beide zu ungefähr gleichen Teilen im Messsignal vorhanden sind (der $1s2s\ ^1S$-Zustand ist etwas weniger oft vorhanden). Die bereits skalierten Daten der CI-Rechnung (•) in Abbildung 4.13 sind damit um einen Faktor 2 größer, liegen allerdings immer noch innerhalb der Messungenauigkeit, die aus der unbekannten MCP-Detektoreffizienz für neutrale Atome entsteht.

4.5 Besetzungsverteilung der Rydbergzustände im Experiment

Ein indirekter Vergleich mit der Besetzungsverteilung der Hauptquantenzahl n ist durch Feldionisation mit einem elektrischen Feld möglich, die experimentelle Vorgehensweise entspricht der aus Kapitel 3, wo bei schwereren Edelgasen Rydbergzustände mit statischen Feldern an verschiedenen Punkten an der Flugstreck ionisiert wurden. Die n-Verteilung, die bei Helium direkt nach der Laserinteraktion vorliegt (Abb.4.10), wird mit einem Feld beeinflusst, das an die Feldplatten in der Wechselwirkungszone angelegt wird. Die gemessene Verteilung ohne die bereits zerfallenen Rydbergzustände wird durch das Plattenpaar vor dem MCP-Detektor untersucht.
Im Gegensatz zu Argon und den anderen schwereren Edelgasen wird bei Helium die Ausbeute an neutralen angeregten Atomen durch ein detektornahes Feld beeinflusst.

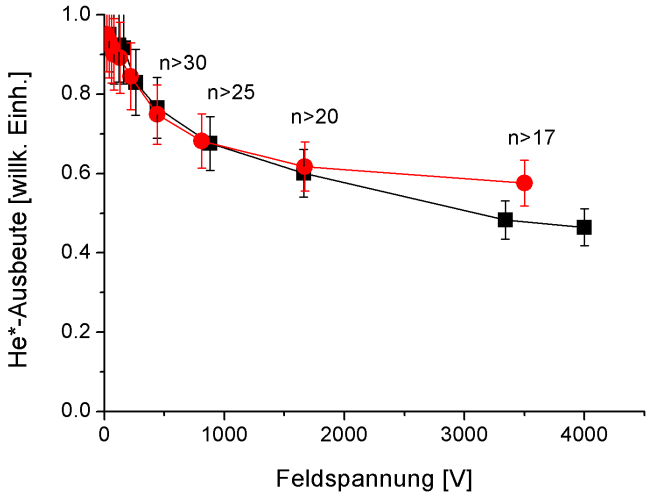

Abbildung 4.14: Abhängigkeit des Nachweises angeregter Heliumatome von der angelegten Feldspannung an den Wiley-McLaren-Plattenstapel (■) oder das Elektrodenpaar vor dem MCP-Detektor (●). Die Laserintensität beträgt $2.3 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$. Ebenfalls angegeben sind einige n-Quantenzahlen, bis zu denen die Zustände mit der angelegten Spannung feldionisiert werden.

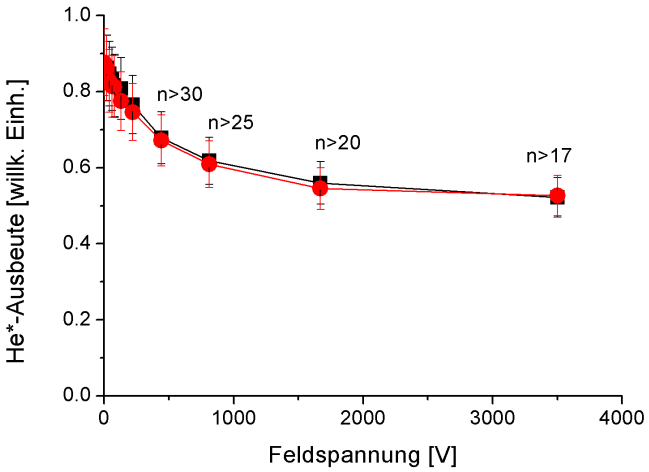

Abbildung 4.15: Abhängigkeit des Nachweises angeregter Heliumatome von der angelegten Feldspannung bei verschiedenen Laserintensitäten: (■): $2.3 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$, (●): $7 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$. Die Feldspannung liegt am Plattenpaar vor dem Detektor an. Die Ausbeuten der beiden Messungen wurden auf den Wert bei n=40 (120V) normiert.

Abbildung 4.14 zeigt beide Messungen des He*-Detektorsignals in Abhängigkeit von den Feldspannungen, angelegt jeweils an das Plattenpaar vor dem Detektor oder an die hinteren beiden Platten (U_a, s. Abb.3.3) des Wiley-McLaren-Plattenstapels. Das Feld um die Wechselwirkungszone wird ca. 100ns nach dem Laserpuls ein- und nach weiteren 100μs wieder abgeschaltet, das detektorseitige Feld liegt permanent an. Die Messungenauigkeit, die in Abb. 4.14 und auch in den folgenden Messungen eingezeichnet ist, ergibt sich analog zu den Messungen an Argon aus den Pulsenergieschwankungen des Lasersystems zu 10% des gemessenen Signals. Bei Feldspannungen von 2kV reduziert sich die Ausbeute an angeregten Heliumatomen um circa 35%, was bedeutet, dass ein Drittel der nachgewiesenen angeregten Zustände n $>$ 20 besetzen. Diese Abnahme ist unabhängig von der Laserintensität, wie aus Abb. 4.15 ersichtlich ist, und entspricht damit sowohl dem Ergebnis der Monte-Carlo-Simulation aus Abb.4.5 als auch den Ergebnissen für Argon, Krypton und Xenon aus Abbildung 3.14. Die Abnahme des Signals bis 2kV ist auch unabhängig davon, an welchem Punkt im Gasstrahl die Feldionisation vorgenommen wurde. Erst bei Spannungen von mehr als 2kV reduziert sich die Zahl der angeregten Atome stärker, wenn der elektrische Feldpuls an die Elektroden um die Wechselwirkungszone angelegt wurde. Dieses Verhalten ist mit dem Zerfall von Zuständen mit n $<$ 20 zu erklären. Direkt nach der Laserwechselwirkung liegen diese Zustände noch vor, können feldionisiert werden und tragen nicht mehr zur Zerfallskaskade bei. Nach Durchlaufen der Flugstrecke vor dem Detektor sind diese Zustände in kleinere n bis hin zum metastabilen Niveau zerfallen und können mit der maximal möglichen Spannung von 3.5kV nicht mehr feldionisiert werden. Dementsprechend ist die Ausbeute an angeregten Atomen höher.

Liegt während der Atom-Laser-Wechselwirkung hingegen ein (statisches) Feld über der Wechselwirkungszone an, ist das Abfallverhalten bei ansteigender Feldstärke viel steiler. Abbildung 4.16 zeigt eine Signalreduktion bei statischem Feld um einen Faktor 4.5 im Gegensatz zu 1.7 in der Messung mit Feldpuls. Die stärkste Reduktion findet dabei bei Feldstärken bis 150V/cm statt. Diese sind zu gering um in der MC-Simulationsrechnung einen sichtbaren Effekt zu erzeugen; die Feldstärken des Laserpulses sind um sieben Größenordnungen höher. Aufgrund der Anstiegszeit des Spannungspulses durch Kapazitäten im Hochspannungsschalter vergehen jedoch mindestens 100ns, bis die Feldspannung den eingestellten Wert erreicht hat. In dieser Zeit finden bereits Zerfallskaskaden in nicht feldionisierbare Zustände statt. Bei konstant angelegter Spannung entfällt diese Verzögerung durch den Schalter. Das Timing des Feldpulses ist eine mögliche Erklärung für den großen Unterschied zwischen den beiden Messkurven in Abb. 4.16. Die Frage, ob diese Erklärung den Ausbeutenabfall vollständig erklärt, konnte im Rahmen dieser Arbeit jedoch noch nicht beantwortet werden.

Ein direkter Vergleich der gemessenen Spannungsabhängigkeit der Ausbeute an Atomen in angeregten Zuständen mit der n-Verteilung aus der Monte-Carlo-Simulation ist nur eingeschränkt möglich, da die Simulationsdaten nur die Verteilung auf die angeregten Zustände direkt nach der Laserwechselwirkung wiedergeben. Sämtliche Effekte, wie der

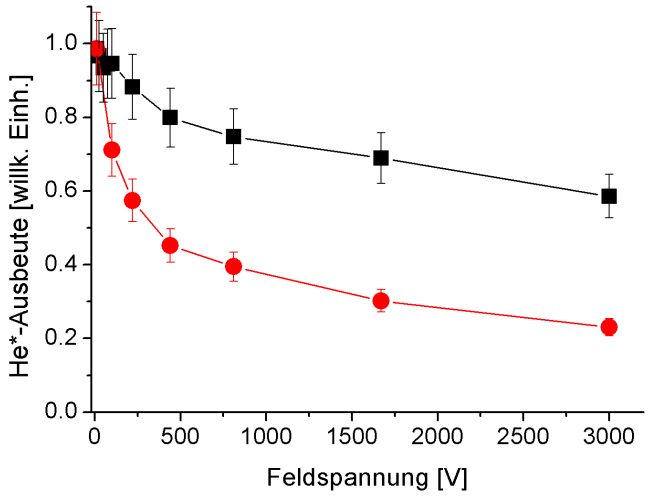

Abbildung 4.16: He*-Signal bei einem Feldpuls (■) und einem statischen Feld (●) um die Wechselwirkungszone. Die Ausbeuten sind auf den Messpunkt bei 10V/cm normiert worden.

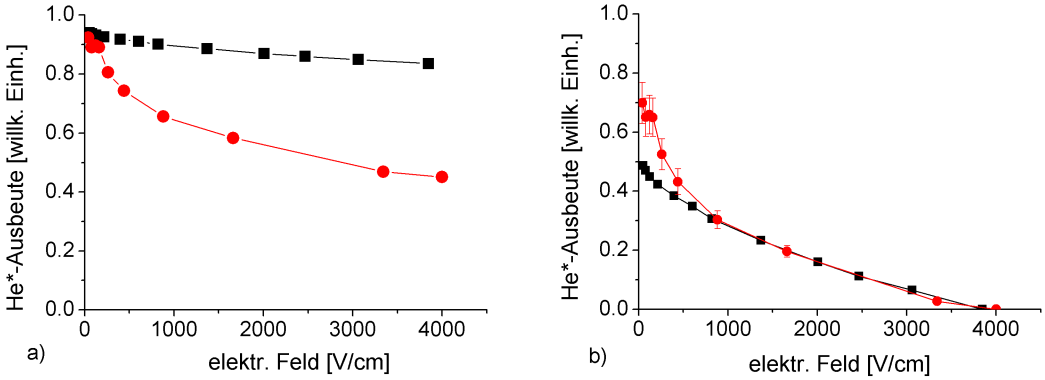

Abbildung 4.17: Vergleich der Spannungsabhängigkeit der gemessenen He*-Ausbeute mit den Daten aus der Modellrechnung. a) Messdaten (●) und Ergebnisse der MC-Simulation(■), b) Anpassung der Messergebnisse (●) an die Simulationsdaten (■) unter Berücksichtigung der Lebensdauer der einzelnen Zustände. Weitere Ausführungen siehe Text.

prozentuale Zerfall von Zuständen und Umverteilung der Besetzungsdichten, müssen nachträglich hinzugefügt werden.
Insbesondere der Zerfall von Zuständen mit n $<$ 20 verzerrt die gemessenen Ausbeuten bei variierendem Feld in Bezug auf die Besetzung der einzelnen Hauptquantenzahlen. Die Atome, die in langlebige Rydbergzustände angeregt werden, weist der MCP-Detektor zu 100% nach, kurzlebige Zustände hingegen zerfallen, wie bereits erwähnt, nur zu etwa einem Prozent in den nachweisbaren metastabilen Zustand. Für einen Vergleich von Simulation und Messung bedeutet dies, dass der Signalanteil für Felder unterhalb von 2kV/cm mit viel stärkerer Gewichtung gemessen wird. Rechnet man aus den Messdaten und den berechneten Daten den Anteil an kurzlebigen Zuständen heraus, kann man beide Datensätze vergleichen. Es werden daher nun einige stark vereinfachende Annahmen bezüglich der Lebensdauer der vorhandenen Zustände gemacht. Wie in Abbildung 4.17a zu sehen ist, unterscheidet sich die Abfalldynamik der gemessenen Daten bei wachsender Feldspannung stark von dem berechneten Verlauf. Die Grenze, bei der die Lebensdauer der angeregten Zustände kleiner ist als die Flugzeit der Heliumatome, ist keine scharfe Kante, sondern aufgrund der Maxwellverteilung der Flugzeiten und der wachsenden Lebensdauern bei größeren Bahndrehimpulsen ein fließender Übergang. Die erste Annahme zur Vereinfachung ist folgende: Alle Zustände mit n$<$18 seien am Detektor definitiv zerfallen, Zustände mit n=18 und höher werden nachgewiesen. Des Weiteren werde die gemessene Ausbeute, die bei einer Feldspannung von 4kV (entspricht Ionisation von allen Zuständen ab n=17) übrig bleibt, dem metastabilen Zustand von Helium zugeordnet, der vom Feld nicht beeinflusst wird. Dieser Anteil wird vom Messsignal abgezogen. Entsprechend wird mit den Simulationsdaten verfahren und nur die Anzahl der gebundenen Zustände mit n$>$17 betrachtet. Dementsprechend ist die Feldspannung von 4kV nun ein Referenzpunkt für beide Datensätze. Die Messdaten werden nun auf die Simulationsdaten normiert; das Ergebnis ist in Abbildung 4.17b zu sehen. Trotz der drastischen Näherungen stimmt der Verlauf von Messdaten und berechneten Daten für Spannungen ab etwa 600V (entspricht Ionisation von n$>$27) überein. Bei kleineren Feldspannung wächst die Abweichung hingegen an.
Das Ergebnis der Messungen am Edelgas Helium bestätigt die theoretischen Vorhersagen zum FTI-Prozess, insbesondere die Elliptizitätsabhängigkeit und die Messergebnisse für die Raten der angeregten Heliumatome sind ein klares Indiz für das Vorhandensein eines weiteren Rückstreuprozesses. Die Ergebnisse der Monte-Carlo-Simulationen und der quantenmechanischen Rechnungen stimmen ebenfalls mit den gemessenen Daten überein, wenn die unvermeidlichen Zerfallsprozesse der angeregten Zustände berücksichtigt werden. Die Komplexität dieser Prozesse ist jedoch auch der Grund dafür, dass mit einer einfachen Feldionisationsmessung die Besetzungsverteilung der Zustände nur näherungsweise überprüft werden kann. Außerdem sind in der Modellrechnung Effekte wie die Zustandsumverteilung durch Schwarzkörperstrahlung vernachlässigt worden.
Da sich bei den schwereren Edelgasen vergleichbare Ergebnisse in den Messungen ergeben, liegt der Analogieschluß nahe, dass auch hier der FTI-Prozess stattfindet. Insbesondere

die Vergleichbarkeit der intensitätsabhängigen Neutralenausbeute, der Polarisationsabhängigkeit bei Helium und Argon sowie des Abfallverhaltens bei der Produktion von angeregten neutralen Atomen in elektrischen Feldern ist ein starkes Indiz für einen Wiedereinfang eines Elektrons auch bei Neon, Argon, Xenon, und Krypton. Der Wiedereinfang des Elektrons durch das Coulombpotential ist jedoch nicht die einzige Dynamik des atomaren Systems im Feld des Lasers. Das nächste Kapitel wird zeigen, dass durch die ponderomotorische Kraft auf das Elektron im Laserpuls unter bestimmten Voraussetzungen das gesamte Atom beschleunigt wird.

5 Beschleunigung neutraler Atome durch die ponderomotorische Kraft

Geladene Teilchen in einem inhomogenen elektromagnetischen Wechselfeld werden durch eine Kraft beeinflusst, die aus der Oszillation mit dem Feld entsteht und in Richtung des Intensitätsgradienten des Feldes wirkt. Durch die Inhomogenität des Feldes findet auf das Teilchen im zeitlichen Mittel ein Energieübertrag statt, so dass das Teilchen diese ponderomotorische Kraft erfährt.

$$\vec{F_p} = -\nabla U_p = -\frac{e^2}{4m_e\omega^2}\nabla|\vec{E_0}|^2 \tag{5.1}$$

Die ponderomotorische Kraft ist in der Lage, geladene Teilchen (Elektronen) auf über 100 MeV zu beschleunigen (*Laser Plasma Accelerators* [18]). Auf neutrale Teilchen wirkt in einem elektromagnetischen Feld hingegen die Dipolkraft, die durch die dynamische Polarisierbarkeit $\alpha(\omega)$ des Atoms entsteht.

$$\alpha_d(\omega) = \frac{e^2/m}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \tag{5.2}$$

Hierbei ist ω_0 die Resonanzfrequenz des als harmonischen Oszillators betrachteten atomaren Übergangs, ω die Frequenz des treibenden Laserfeldes und γ die Dämpfungskonstante. Bei Anregungsfrequenzen weitab von der Resonanz geht die komplexe frequenzabhängige Größe (5.2) in die reelle statische Polarisierbarkeit $\alpha = e^2/(m\omega_0^2)$ über. Das Potential eines neutralen Atoms in einem nichtresonanten optischen Feld ist gegeben durch

$$U_d = -\frac{\alpha}{\epsilon_0 c} \cdot |\vec{E_0}|^2 \tag{5.3}$$

Die Kraft $-\nabla U_d$ zieht das neutrale Atom zu hohen Feldstärken (*High-Field-Seeker*), was beim Einfang von Teilchen mit einer optischen Pinzette (*Optical Tweezer* [63]) ausgenutzt wird. In einem Gasstrahl führt die Dipolkraft $-\nabla\, U_d$ zu einer Ablenkung der Teilchenflugbahn. Dieser *Optical Stark Decelerator* wurde an einem Xenongasstrahl demonstriert [13]; die gemessenen Beschleunigungen für einen 15ns-Laserpuls bei $10^{12}\ W/cm^2$ waren $10^9 m/s^2$.
Kreuzt ein kurzer (40 - 150fs) intensiver Laserpuls einen Heliumgasstrahl, so ist im Ortsbild des Detektors eine Struktur zu sehen, die ebenfalls auf eine Beschleunigung

der neutralen Atome im Feld des Lasers schließen lässt (Abb. 5.1). Dargestellt ist das Detektorbild von angeregten Heliumatomen nach $1.8 \cdot 10^6$ Messzyklen. Beide Koordinatenachsen wurden bereits mit den Abbildungsmaßstäben transformiert; hierbei ist die Koordinate z die Laserstrahlrichtung und r_D die radiale Auslenkung der Atome senkrecht zum Laserstrahl. Der Fokus des Laserpulses befindet sich im Koordinatenursprung. Am auffälligsten ist in Abb. 5.1 die starke räumliche Verbreiterung des Signals, die ihr Maximum im Intensitätsmaximum bei z=0 hat. Dies steht im Gegensatz zu den Messungen an Argon und schwereren Edelgasen, wo im Bereich des Fokus keine Querstreuung der Atome zu erkennen ist. Des Weiteren nimmt die Auslenkung mit abnehmender Laserintensität (entlang der z-Achse) immer weiter ab. Die Verteilung der Atome ist außerdem etwas asymmetrisch zur Laserstrahlachse. Berechnet man aus dem Dipolpotential 5.3 über die Bewegungsgleichung

$$\frac{d^2x}{dt^2} = \frac{\alpha}{m\epsilon_0 c} \cdot \nabla |\vec{E_0}|^2 \tag{5.4}$$

die zu erwartende Beschleunigung für neutrale Heliumatome im Grundzustand (1.38 a.u. statische Polarisierbarkeit) durch die Dipolkraft eines 40fs-Laserpulses mit $1 \cdot 10^{16} W/cm^2$, so erhält man einen Wert von $3 \cdot 10^{12}\ m/s^2$. Dies entspricht einer Endgeschwindigkeit von wenigen Zentimetern pro Sekunde nach 40fs Beschleunigungszeit und steht im Widerspruch zum Ergebnis in Abbildung 5.1, wo Quergeschwindigkeiten von bis zu 50 m/s gemessen wurden. Die Dipolkraft, die sich durch Einsetzen der statischen Polarisierbarkeit für den hier vorliegenden nichtresonanten Fall der Anregung ergibt, kann die beobachteten Beschleunigungen also nicht erklären. Im Folgenden wird erst die Auswertung der Geschwindigkeiten aus den Detektorbildern beschrieben. Anschließend wird die Ursache der großen Auslenkungen quantitativ untersucht und ein theoretisches Modell entwickelt, welches statt der Dipolkraft die ponderomotorische Kraft enthält.

Die Messungen wurden an einem Helium- sowie an einem Neongasstrahl durchgeführt, wobei die Nachweismethode wieder der Messung angeregter neutraler Atome durch einen MCP-Detektor entspricht. Da es bei dem untersuchten Prozess fast ausschließlich auf die räumliche Verteilung der Atome auf dem Detektor ankommt, wurde im experimentellen Aufbau 3.1 die Blende im Gasstrahl entfernt und die Feldstabkonfiguration genutzt, um geladene Teilchen vom MCP-Detektor fernzuhalten. Zur Umrechnung der Detektorkoordinaten in die entsprechende Radialgeschwindigkeit ist eine relativ klar definierte Flugzeit der neutralen Atome zwischen der Laseranregung und dem Detektionszeitpunkt notwendig. Die Flugzeitverteilung von neutralen angeregten Heliumatomen 3.11 erstreckt sich jedoch bereits über fast $500\mu s$. Das Detektionszeitfenster wurde daher für diese Messungen auf eine Breite von $40\mu s$ um das Verteilungsmaximum bei $220\mu s$ begrenzt. Mit einer Flugstrecke von 38cm haben somit alle detektierten Atome eine Geschwindigkeit von $1730(\pm 200) m/s$. Das verwendete Lasersystem war das kommerzielle System des Herstellers *Spectra Physics*, das Pulse mit einer Energie von bis zu 2.5 mJ bei einstellbarer Pulsdauer und einer Wiederholrate von 1kHz liefert.

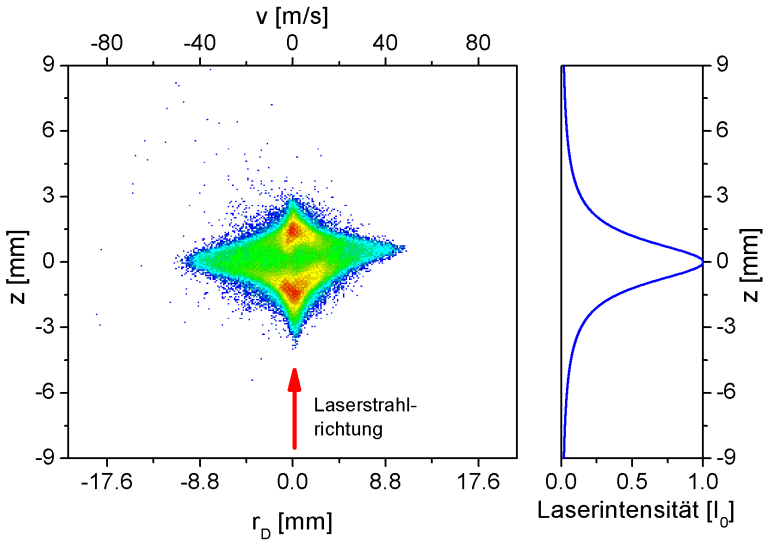

Abbildung 5.1: Ortsverteilung angeregter Heliumatome nach Beschleunigungsprozess durch einen Laserpuls von 1.5mJ bei 40fs. Die Spitzenintensität im Fokus beträgt $8.8 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$. Der relative Intensitätsverlauf entlang der Strahlachse ist rechts daneben durch die blaue Kurve dargestellt. Bei der Umrechnung von Detektor- auf reale Koordinaten wurde die z-Achse mit einem Faktor von 32.5 transformiert, die radiale Achse r_D hingegen nur mit dem Detektormaßstab 14.11.

Aus der Strahlgeschwindigkeit der Atome, die durch die obige Beschränkung nun klar definiert ist, lässt sich aus Abb. 5.1 diese Geschwindigkeit in radialer Richtung errechnen, sie beträgt 45 m/s auf der linken und 50 m/s auf der rechten Seite. Bei einer Änderung der Pulsdauer des Lasers bei konstanter Intensität ergeben sich Profile mit Maximalgeschwindigkeiten, die in Abbildung 5.2 dargestellt sind. Die Datenpunkte der maximalen Geschwindigkeiten sind den ortsaufgelösten Detektorbildern entnommen worden, indem die sichtbare Kontur der maximalen radialen Auslenkung punktweise ausgewertet wurde. Diese Koordinaten können entsprechend des Abbildungsmaßstabes und der bekannten Gasstrahlgeschwindigkeit in Geschwindigkeiten umgerechnet werden. Dabei entsteht eine Ableseungenauigkeit durch die unscharfen Ränder der Konturen der Profildaten, die zu einem Fehler von $\pm\,3$ m/s bei den Maximalgeschwindigkeiten führt.
Man sieht, dass die Maximalgeschwindigkeit der Atome mit wachsender Pulsdauer zunimmt; der Wert für die Beschleunigung beträgt bei 120fs Pulsdauer (Abb. 5.2e) $5 \cdot 10^{14}\,m/s^2$ und bei 40fs bei höherer Intensität ($10^{16}\,W/cm^2$, Abb. 5.2f) $1.3 \cdot 10^{15}\,m/s^2$, was der 10^{14}-fachen Erdbeschleunigung entspricht. Dieser Wert lässt sich nicht durch die Dipolkraft aus der statischen Polarisierbarkeit erklären, obwohl die Voraussetzung

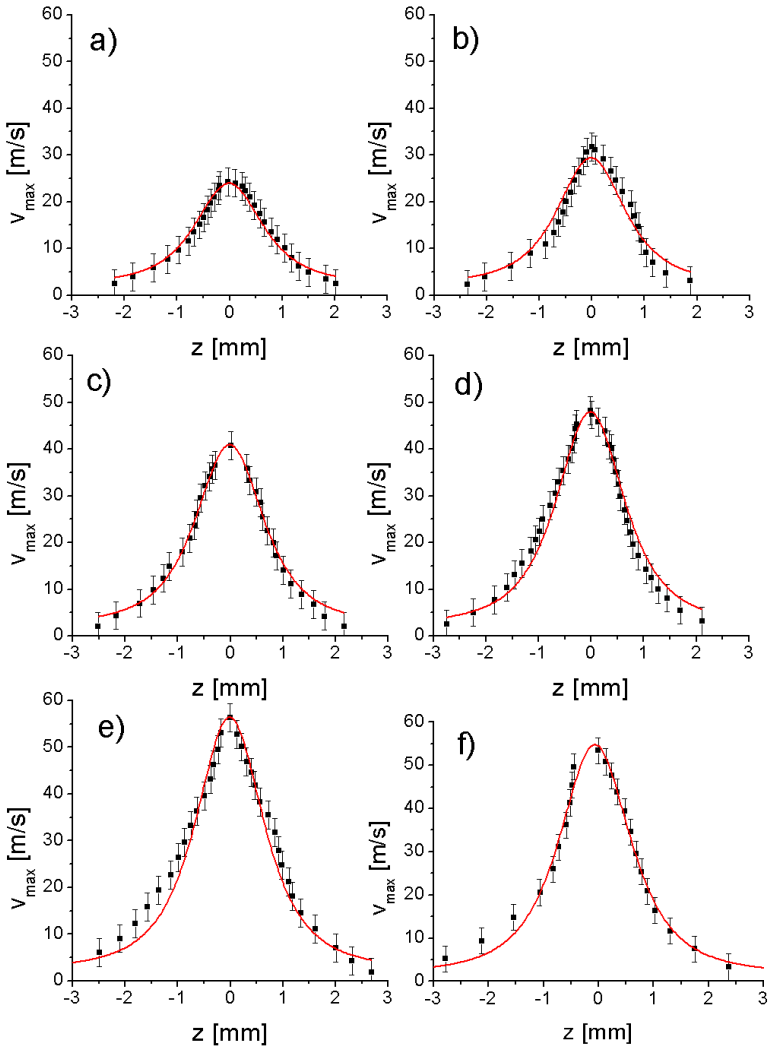

Abbildung 5.2: Maximalgeschwindigkeiten angeregter Heliumatome entlang der Laserstrahlachse z für verschiedene Pulsdauern bei einer Spitzenintensität von $3.5 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$: a) 40fs, b) 60fs, c) 80fs, d) 100fs, e) 120fs. Figur f) zeigt die Maximalgeschwindigkeiten für eine Messung mit hoher Spitzenintensität $I = 10^{16}\ W/cm^2$ (1.8 mJ, 40fs). die roten Kurven sind eine Kurvenanpassung mit Formel 5.16. Weitere Ausführungen sind dem Text zu entnehmen.

einer nichtresonanten Dipolwechselwirkung des Lasers mit den Heliumatomen gegeben ist. Stattdessen wird nun gezeigt, dass durch den Einfluss der ponderomotorischen Kraft auch bei neutralen Atomen eine große Beschleunigung erreicht werden kann.

5.1 Ponderomotorische Kraft auf ein geladenes Teilchen

Die ponderomotorische Kraft $\vec{F_p} = -\nabla U_p$ auf ein neutrales Atom, die sich aus dem ponderomotorischen Potential U_p ergibt, war bislang nicht Gegenstand der Forschung. Im Allgemeinen wurde die Auswirkung dieser Kraft bei kurzen Laserpulsen (sub-ps-Bereich) vernachlässigt, da die Interaktionszeit zwischen Laserfeld und Atom zu kurz ist. Trotzdem kann die ponderomotorische Kraft, die auf ein (quasifreies) Elektron durch einen kurzen Laserpuls wirkt, unter bestimmten Voraussetzungen zu erheblichen Beschleunigungen des Atoms führen. Dieser Prozess der Beschleunigung neutraler Materie, der aus den vorangegangenen Messungen hervorgeht, soll im folgenden theoretisch erarbeitet werden. Die Kraft, die im nichtrelativistischen Fall auf ein Elektron im elektromagnetischen Feld wirkt, ist die Lorentzkraft

$$\vec{F_L} = e(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \tag{5.5}$$

Für ein linear polarisiertes elektrisches Wechselfeld $\vec{E} = \vec{E_0}(\vec{r})sin\omega t$ lässt sich 5.5 bei $\vec{r} = \vec{R_0}$ unter Ausnutzung der Maxwellgleichung $\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\dot{B}$ in erster Ordnung entwickeln zu

$$\vec{F^{(1)}} = e\left(\vec{E_0}(\vec{R_0})sin\omega t + (\delta \cdot \nabla)\vec{E_0}(\vec{R_0})sin\omega t + \vec{v} \times (\nabla \times \vec{E_0}(\vec{R_0})\frac{cos(\omega t)}{\omega})\right) \tag{5.6}$$

Die Geschwindigkeit $\vec{v}$ und die Verschiebung δ des Elektrons sind in nullter Ordnung gegeben durch

$$\vec{v} = -\frac{e}{m_e\omega}\vec{E_0}cos\omega t \tag{5.7}$$

und

$$\delta = -\frac{e}{m_e\omega^2}\vec{E_0}\,(sin(\omega t) - 1) \tag{5.8}$$

Die Gleichungen (5.7) und (5.8) können in die Gleichung für $\vec{F^{(1)}}$ 5.6 eingesetzt werden und man erhält

$$\begin{aligned}\vec{F^{(1)}} = e(\vec{E_0}(\vec{R_0})sin\omega t - \frac{e}{m_e\omega^2}(sin^2\omega t - sin\omega t)(\vec{E_0}(\vec{R_0}) \cdot \nabla)\vec{E_0}(\vec{R_0}) \\ - \frac{e}{m_e\omega^2}cos^2\omega t\vec{E_0}(\vec{R_0}) \times (\nabla \times \vec{E_0}(\vec{R_0})))\end{aligned} \tag{5.9}$$

Diese Form lässt sich durch Mittelung über eine zeitliche Periode des Feldes vereinfachen zu

$$\vec{F}^{(1)} = -\frac{e^2}{2m_e\omega^2}(\vec{E_0}(\vec{R_0})\cdot\nabla)\vec{E_0}(\vec{R_0}) + \vec{E_0}(\vec{R_0})\times(\nabla\times\vec{E_0}(\vec{R_0})) \tag{5.10}$$

Die bereits erwähnte Formel für die ponderomotorische Kraft 5.1 erhält man durch Ausnutzen der Vektorbeziehung $\frac{1}{2}\nabla\vec{a}^2 = (\vec{a}\cdot\nabla)\vec{a} + \vec{a}\times(\nabla\times\vec{a})$. Diese vereinfachte Form der ponderomotorischen Kraft entsteht also aus der Näherung, die langsame Bewegung des Elektrons durch den Feldgradienten von der schnellen oszillierenden Bewegung im Laserfeld zu separieren.
Sobald ein Elektron durch einen Tunnelprozess das Atom verlassen hat, erfährt es eine ponderomotorische Kraft in Richtung des Intenstätsgradienten des Laserfeldes. Die Kraft wirkt insbesondere auch dann, wenn das Elektron nach dem Ende des Laserpulses noch an das Atom gebunden ist (FTI-Prozess). Dies kann mittels einer Trajektorienrechnung mit Bewegungsgleichungen analog zur Modellrechnung des FTI-Prozesses (Abschnitt 4.2) gezeigt werden. Die direkte ponderomotorische Kraft auf den Ionenrumpf ist aufgrund der großen Masse des Ions (M) im Vergleich zur Elektronenmasse (m_e) vernachlässigbar. Letztendlich führt dies zu einer Schwerpunktsbewegung des neutralen angeregten Atoms

$$M\ddot{\vec{R}}(t) = -\frac{e^2}{4m_e\omega^2}\nabla|\vec{E_0}|^2 \tag{5.11}$$

Diese Bewegungsgleichung ergibt sich auch analytisch aus einem gekoppelten Differentialgleichungssystem der Lorentzkräfte auf das Ion F_1 und das Elektron F_2 und der Coulombkraft $\vec{F_c} = q_1q_2(\vec{r_1}-\vec{r_2})/(|\vec{r_1}-\vec{r_2}|)^3$:

$$\begin{aligned}\vec{F_1} &= m_1\ddot{\vec{r_1}} = q_1(\vec{E_1}+\vec{v_1}\times\vec{B_1}) + \vec{F_c}\\ \vec{F_2} &= m_2\ddot{\vec{r_2}} = q_2(\vec{E_2}+\vec{v_2}\times\vec{B_2}) + \vec{F_c}\end{aligned} \tag{5.12}$$

Mit den elektrischen und magnetischen Feldern erster Ordnung eines fokussierten Gaußstrahls ([64], Formel (16a-e)) erhält man zusätzliche B– und E-Feldkomponenten in z-Richtung, und das Gleichungssystem (5.12) kann komponentenweise geschrieben werden als

$$\begin{aligned}m_1\ddot{x_1} &= E_{1x} + \dot{y}_1B_{1z} - \dot{z_1}B_{1y} + F_{c,x}\\ m_1\ddot{y_1} &= -\dot{x_1}B_{1z} + F_{c,y}\\ m_1\ddot{z_1} &= \dot{x_1}B_{1y} + F_{c,z} + E_{1z}\\ \\ m_2\ddot{x_2} &= E_{2x} - \dot{y}_2B_{2z} + \dot{z_2}B_{2y} - F_{c,x}\\ m_2\ddot{y_2} &= \dot{x_2}B_{2z} - F_{c,y}\\ m_2\ddot{z_2} &= -\dot{x_2}B_{2y} - F_{c,z} - E_{2z}\end{aligned} \tag{5.13}$$

Durch Transformation von (5.13) auf Schwerpunkts- und Relativkoordinaten erhält

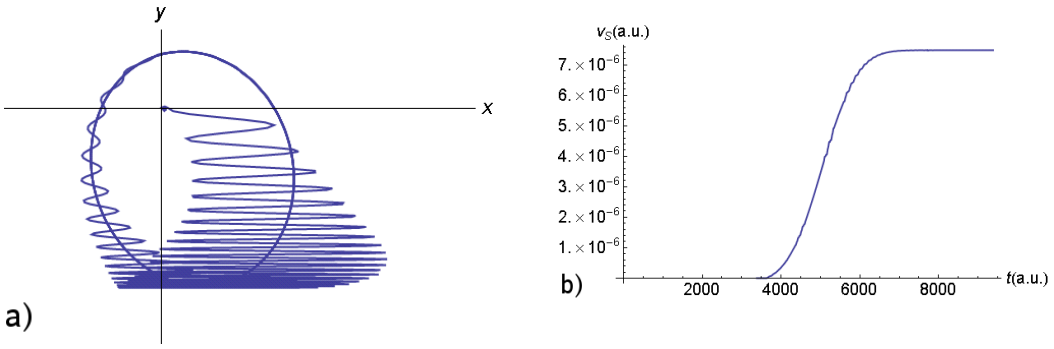

Abbildung 5.3: a) Simulation einer Trajektorie in Relativkoordinaten des wiedereingefangenen Elektrons nach Beschleunigung des Heliumatoms durch einen 40fs-Laserpuls bei $3.5 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$
b) Zeitlicher Verlauf der Geschwindigkeit des gesamten Atoms (Geschwindigkeit v_S des Schwerpunktes) bei Beschleunigung mit denselben Parametern wie in a).

man die Bewegungsgleichung 5.11 für die Schwerpunktsbewegung des Atoms, wenn zusätzlich zur Näherung der Felder bis zur ersten Ordnung angenommen wird, dass die Relativgeschwindigkeit und Relativkoordinate nur von der Bewegung des Elektrons im linear polarisierten Laserfeld abhängen. Die Coulombkraft wird für diese analytische Herleitung vernachlässigt.
Ohne diese Näherungen ist Gleichung (5.13) numerisch zu lösen. Analog zu den Monte-Carlo-Simulationen in Kapitel 4.2 ergeben sich bei bestimmten Anfangsparametern gebundene Trajektorien und eine Maximalgeschwindigkeit des Masseschwerpunktes, was beispielhaft für einen solchen Parametersatz in Abbildung 5.3 dargestellt ist. Der Ionisationszeitpunkt liegt am zeitlichen Beginn des Laserpulses, so dass das Elektron während des gesamten Pulses beschleunigt wird und die Geschwindigkeit des Schwerpunktes des Systems $v_S = (m_{He}\vec{v}_{ion} + m_e\vec{v}_{e^-})/(m_{He} + m_e)$ gegen 16.5 m/s konvergiert.
Der steilste Intensitätsgradient eines linear polarisierten Laserpulses mit einer gaußförmigen Intensitätsverteilung liegt in radialer Richtung bezüglich der Laserstrahlachse z. Wertet man 5.11 für die Intensität $I(\vec{r})$ aus und betrachtet den radialen Anteil der Kraft, so ergibt sich mit

$$I(\vec{r}) = |\vec{E}_0|^2 = I_0 \left(1 + (z/z_0)^2\right)^{-1} e^{\frac{-2r^2}{r_0^2}} \tag{5.14}$$

wobei I_0 die Intensität im Fokus, $r_0 = w_0\sqrt{1 + (z/z_0)^2}$ und w_0 die Strahltaille ist, eine Differentialgleichung (in Schwerpunktskoordinaten) für die radiale Beschleunigung eines neutralen angeregten Atoms aus einem FTI-Prozess

$$\ddot{r}(t) = \frac{I(\vec{R})}{M\omega^2}\frac{r(t)}{r_0^2}e^{-(t/\tau)^2} \quad . \tag{5.15}$$

Zur Lösung der Differentialgleichung 5.15 nutzt man die bereits erwähnte Näherung aus, dass sich der Ionenrumpf während der kurzen Laserpulsdauer praktisch nicht bewegt; die Zeitabhängigkeit von $r(t)$ entfällt also. Damit lässt sich (5.15) durch Integration über den gesamten Laserpuls lösen. Der Gradient des Feldes ist bei $r = r_0/2$ am größten, wodurch Atome an dieser Position die maximale Kraft erfahren. Durch Einsetzen dieses Wertes in Gleichung 5.15 ergibt sich eine analytische Gleichung für die maximale Quergeschwindigkeit, die ein Atom, das an einer Position z im Laserstrahl beschleunigt wurde, erreichen kann:

$$v_{max}(z) = \frac{I_0}{2M\omega^2 w_0} \frac{\sqrt{\pi} e^{-0.5}}{(1 + (z/z_0)^2)^{3/2}} \tau \tag{5.16}$$

Diese Maximalgeschwindigkeit ist proportional zur Pulsdauer des Laserpulses. Verlängert man also die Pulse und hält die Intensität im Fokus konstant, erhöht sich auch die Maximalgeschwindigkeit. Für einen Laserpuls mit einer Pulsdauer von 40fs und einer Intensität im Fokus von $9 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$ ergibt sich nach (5.16) eine Maximalgeschwindigkeit von 42 m/s für Heliumatome, die aus dem Laserfokus heraus beschleunigt werden. Die Beschleunigung beträgt nach Gleichung 5.16 die 10^{14}-fache Erdbeschleunigung. Ein Vergleich der experimentell bestimmten Geschwindigkeiten aus Abbildung 5.1 mit der theoretisch zu erreichenden Maximalgeschwindigkeit bei $z = 0$ nach (5.16) ergibt mit 47 m/s eine Übereinstimmung.
Die maximale Geschwindigkeit und damit auch die maximale Kraft auf das Atom skaliert nach (5.16) in radialer Richtung mit r_0^{-1}, ebenso lässt sich zeigen, dass die Kraft in Richtung des Laserstrahls mit z_0^{-1} skaliert. Da die Rayleighlänge z_0 zwei Größenordnungen über der Strahltaille liegt und der Intensitätsgradient entsprechend flach ist, kann die Kraft in z-Richtung vernachlässigt worden.
Das Vorhandensein von gebundenen Elektronen und damit die Möglichkeit der Beschleunigung des gesamten Atoms hängt vom Kraftverhältnis von ponderomotorischer Kraft zu bindender Coulombkraft auf das jeweilige Elektron ab. Die Coulombkraft ist zwar nur in Kernnähe groß (10^{-2} a.u. bei 10 a.u. Abstand des Elektrons vom Kern), während die ponderomotorische Kraft während des gesamten Laserpulses auf das Elektron wirkt. Diese ist jedoch bei einer Intensität von $3.5 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ und einer Strahltaille von 16μm um mehr als zwei Größenordnungen kleiner ($5.2 \cdot 10^{-5}$ a.u.) als die Coulombkraft, die resultierende Kraft auf das Elektron ist also eine attraktive bezüglich des Kerns. Erhöht man jedoch den Intensitätsgradienten, was in der Simulation durch Verkleinern der Strahltaille w_0 erreicht werden kann, liegen ab einem bestimmten Wert für w_0 beide Kräfte in derselben Größenordnung,und das Elektron wird vom Heliumkern nicht mehr eingefangen (Abbildung 5.4). Dieser Punkt des Abreißen des Elektrons hängt unter anderem vom Ionisationszeitpunkt t_{ion} ab: Je eher das Elektron aus dem Atom tunnelt, desto stärker wird es von F_p beeinflusst und die Wahrscheinlichkeit des Wiedereinfangs nimmt ab. Für die Rechnung in Abbildung 5.4 wurden zu jedem Ionisationszeitpunkt

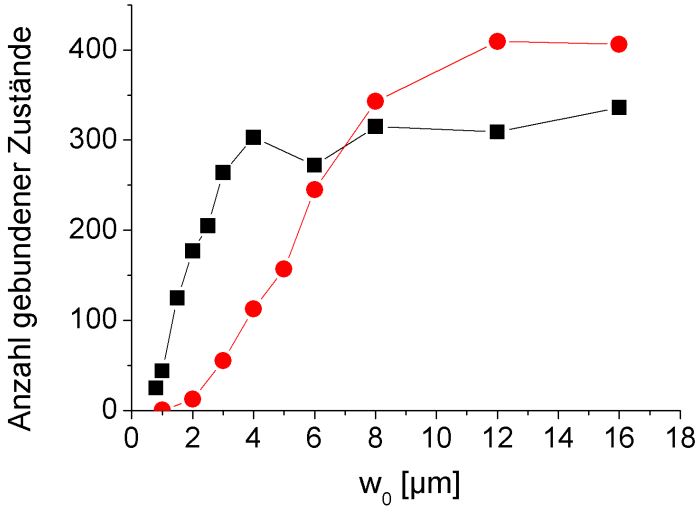

Abbildung 5.4: Anzahl gebundener Zustände bei beschleunigten Heliumatomen bei verschiedenen Intensitätsgradienten im Laserpuls (40fs, $I = 3.5 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$). Die Gradienten werden durch Variation der Strahltaille w_0 eingestellt. Mit einer MonteCarlo-Simulation wird die Anzahl der gebundenen Zustände von $2.5 \cdot 10^4$ gestarteten Trajektorien analog zur Methode aus Kapitel 4.2 bestimmt. Bei (■) liegt der Ionisationszeitpunkt t_{ion} um 20fs (Pulsmaximum), bei (●) am Anfang des Pulses bei $1/e^2$ der Maximalintensität I.

25000 Trajektorien gestartet und der Einfluss der Laserfeldstärke zum Zeitpunkt t_{ion} auf die Ionisationswahrscheinlichkeit vernachlässigt. Daher ergibt die Rechnung zu frühen Ionisationszeiten mehr gebundene Atome als nach der ADK-Theorie zu erwarten wäre. Die Intensitäten zur Zeit t_{ion} in Abbildung 5.4 sind $3.5 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ für die Simulation im Pulsmaximum und $2.2 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ am Anfang des Pulses. Das Verhältnis der Ausbeuten an angeregten neutralen Heliumatomen von beiden Startzeiten zueinander ist nach Abbildung 4.2 0.15%, es erfahren also wesentlich weniger Atome die volle Beschleunigung. Dies ist in den Messdaten aus Abbildung 5.1 zu sehen, wo die Dichte an detektierten Atomen zu hohen Maximalgeschwindigkeiten hin abnimmt.
Eine vollständige Simulation der Beschleunigung ist numerisch sehr zeitaufwändig, da die Monte-Carlo-Rechnung über den gesamten Laserpuls einerseits und über das gesamte Wechselwirkungsvolumen um den Laserfokus andererseits erfolgen muss. In dieser Arbeit wird aus diesem Grund darauf nicht weiter eingegangen.

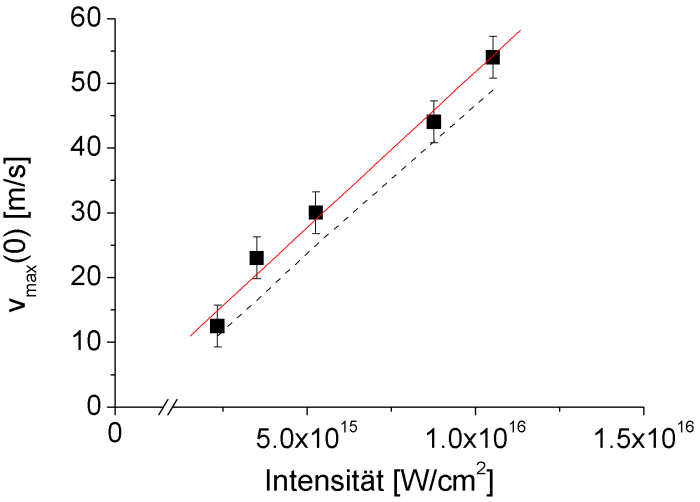

Abbildung 5.5: Intensitätsabhängigkeit der maximalen Quergeschwindigkeiten von Heliumatomen aus dem Laserfokus (z=0). Neben den Messdaten (■) ist eine lineare Kurvenanpassung (–) und berechnete Werte nach Gl. 5.16 (– – –) eingezeichnet.

5.2 Beschleunigung neutraler Helium- und Neonatome

Der im vorangegangenen Abschnitt hergeleitete funktionale Zusammenhang zwischen der Intensität entlang der Laserstrahlachse und der maximalen Radialgeschwindigkeit soll nun mit den Daten aus Abbildung 5.2 verglichen werden. Nach (5.16) ist zu erwarten, dass mit zunehmender Pulsdauer die Maximalgeschwindigkeiten linear ansteigen. Die roten Kurven in Abbildung 5.2 stellen eine gleichzeitige Anpassung der Daten aus a) bis e) mit der Formel für die Maximalgeschwindigkeiten 5.16 dar. Der einzige individuelle freie Parameter ist hier ein Skalierungsfaktor τ_E für $v_{max}(z)$, die Strahltaille w_0 ist ein gemeinsamer Fitparameter. Es ist ersichtlich, dass ein Parametersatz existiert, der eine Übereinstimmung der Messdaten mit den theoretisch ermittelten Werten der Formel zeigt. Die Strahltaille ergibt sich nach der Anpassung zu $w_0 = 16\mu m$, wohingegen die Skalierungsfaktoren (Abb.5.2 a) - e): 1.3, 1.08, 1.16, 1.09, 1.08) im Mittel den Wert 1.14 annehmen. Der Faktor für die Messung bei hoher Intensität (Abb.5.2 f) nimmt beim Fit mit $w_0 = 16\mu m$ den Wert 1.06 an.

Ein ebenfalls linearer Zusammenhang ist nach der Theorie zwischen Maximalgeschwindigkeit und der Intensität des Lasers zu erwarten. In Abbildung 5.5 ist dieser Zusammenhang für die Maximalgeschwindigkeiten von Heliumatomen aus dem Fokus (z=0) dargestellt. Diese Daten wurden aus einer Auswertung von Beschleunigungsprofilen wie in Abbildung 5.2 entnommen, hier blieb jedoch die Pulsdauer während der Messreihe konstant bei 40fs und die Pulsenergie wurde erhöht. Die Geschwindigkeiten wachsen wie

erwartet linear mit der Intensität an, die gemessenen Werte sind jedoch gegenüber den nach Gleichung 5.16 berechneten Werten um konstante $4 - 5$ m/s zu groß. Die Ursache dieser Abweichung konnte bislang nicht geklärt werden.
Die Asymmetrie in den Maximalgeschwindigkeiten, die in Abbildung 5.1 in der rechten Hälfte (im Experiment unterhalb des Gasstrahls) zu größeren Geschwindigkeiten führt als in der linken Hälfte, ist auf einen nicht gaußförmigen Laserpuls zurückzuführen. Daher sind für die Profile aus Abb. 5.2 nur der linke Anteil des des Ortsbildes ausgewertet worden. Zum Vergleich sind in Abb. 5.6 die arithmetisch gemittelten Maximalgeschwindigkeiten von beiden Hälften dargestellt und mit der Formel 5.16 angepasst worden. Die angepassten Kurven reproduzieren den Verlauf der gemessenen Geschwindigkeiten und ergeben auch vergleichbare Skalierungsparameter (von 40 bis 120fs: 1.37, 1.05, 1.02, 0.98, 0.96). Bis auf die Messung bei der Pulsdauer von 40fs liegen die angepassten Kurven der gemittelten Daten als auch die Fitkurven aus 5.2 (in Abb. 5.6 gepunktet eingezeichnet) innerhalb der Messungenauigkeit. Diese ergibt sich wiederum aus der Ableseungenauigkeit der Konturen zu $\pm\, 3$ m/s.
Der Faktor τ_E, der bei den Anpassungen als Skalierungsparameter in die Rechnung eingeht, stellt eine effektive Beschleunigungsdauer des Atoms durch das Laserfeld dar. Falls das Atom über die gesamte Dauer des Pulses beschleunigt wird, ist $\tau_E = 1$. Bis auf die Messungen in Abbildung 5.2a und 5.6 mit 40fs Pulsdauer, bei denen der Faktor einen größeren Wert von ca. 1.3 annimmt, liegen alle Werte um $\tau_E = 1$. Da die Werte für τ_E zum Teil auch größer sind, ist dies ein Hinweis auf einen in der Theorie bisher nicht berücksichtigten Anteil an der Beschleunigung. Derselbe Prozess wird zur Verifizierung des Modells an einem anderen Edelgas untersucht. Das Element Neon, obwohl um den Faktor 5 schwerer als Helium, zeigt ebenfalls den Effekt von radial zur Laserstrahlachse beschleunigten neutralen angeregten Atomen. Ein Vergleich der Maximalgeschwindigkeiten von Atomen aus dem Laserfokus ergibt, dass die Werte für $v_{max}(z = 0)$ bei Neon wie zu erwarten etwa ein Fünftel der Werte von $v_{max}(z = 0)$ bei Helium (Abb. 5.7) betragen.
Die Maximalgeschwindigkeiten der Neonatome (Abb. 5.8) entlang der Laserstrahlachse zeigen dieselbe Abhängigkeit von der Pulsdauer wie die der Heliumatome. Die Anpassung der Formel für $v_{max}(z)$ erfolgt auf die gleiche Weise wie bei der Auswertung der Messergebnisse für Helium. Entsprechend ist auch hier ein Skalierungsfaktor τ_E notwendig, dieser beträgt für Neon im Mittel 0.98 (für Pulsdauern von 40 bis 120fs: 1.13, 0.97, 0.89, 0.88, 1.03 in dieser Reihenfolge). Die effektive Beschleunigungsdauer ist damit mit den Werten für von Heliumatomen vergleichbar. Der Parameter der Strahltaille ergibt wiederum $w_0 = 16\mu m$. Sowohl Helium als auch Neon lässt sich demnach über den FTI-Prozess durch kurze Laserpulse um ein 10^{14}-faches der Erdbeschleunigung beschleunigen; das entwickelte theoretische Modell zeigt eine Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Innerhalb des hier verwendeten Bereichs für die Pulsdauer ist die Stärke der Auslenkung im Fokus proportional zur Pulsdauer und zur Masse der Atome, wie aus Abbildung 5.9 hervorgeht. Dabei ist die Auslenkung unabhängig von

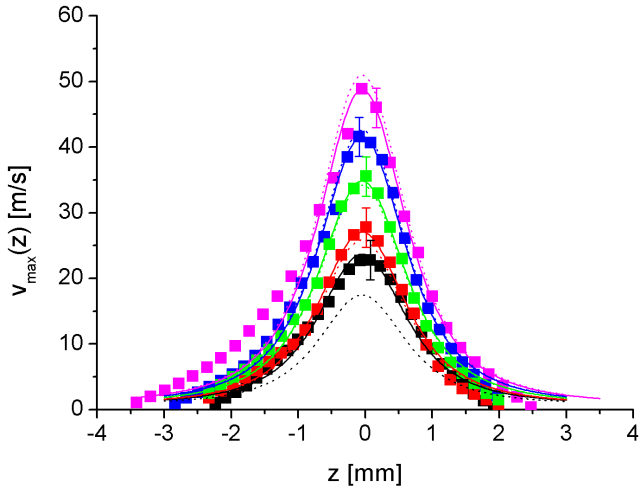

Abbildung 5.6: Maximalgeschwindigkeiten laserbeschleunigter angeregter Heliumatome, arithmetisch gemittelt über beide Profilhälften, bei verschiedenen Pulsdauern: (■): 40fs, (■): 60fs, (■): 80fs, (■): 100fs, (■): 120fs. Die Spitzenintensität beträgt $3.5 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$. Die Anpassungen der gemittelten Daten über Formel 5.16 sind als durchgezogene Linien, die Anpassungen aus 5.2 (zum Vergleich) als gepunktete Linien eingezeichnet.

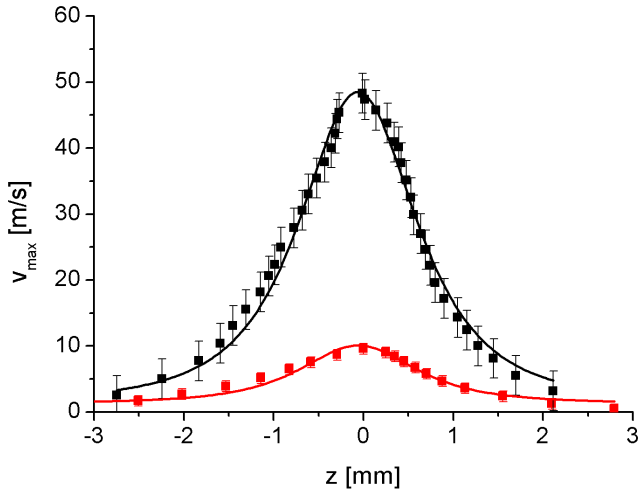

Abbildung 5.7: Vergleich der Maximalgeschwindigkeiten laserbeschleunigter Heliumatome (■) und Neonatome (■). Exemplarisch wurden die Messdaten für 100fs Pulsdauer und $3.5 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$ ausgewählt.

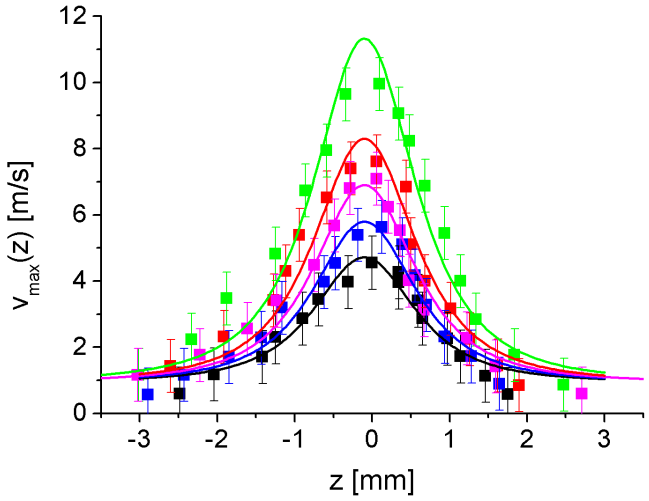

Abbildung 5.8: Maximalgeschwindigkeiten laserbeschleunigter angeregter Neonatome bei verschiedenen Pulsdauern: (■): 40fs, (■): 60fs, (■): 80fs, (■): 100fs, (■): 120fs. Die Spitzenintensität beträgt $3.5 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$.

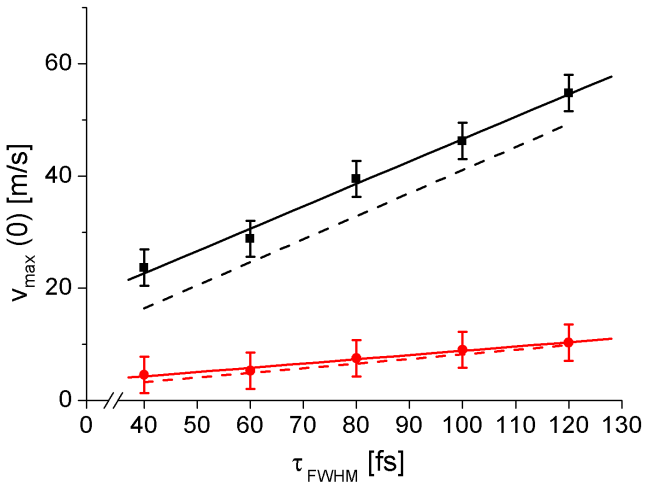

Abbildung 5.9: Vergleich der maximal erreichten Geschwindigkeiten von Helium(■) und Neon(●) im Laserfokus bei einer Spitzenintensität von $3.5 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ mit den errechneten Maximalgeschwindigkeiten (unterbrochene Linien).

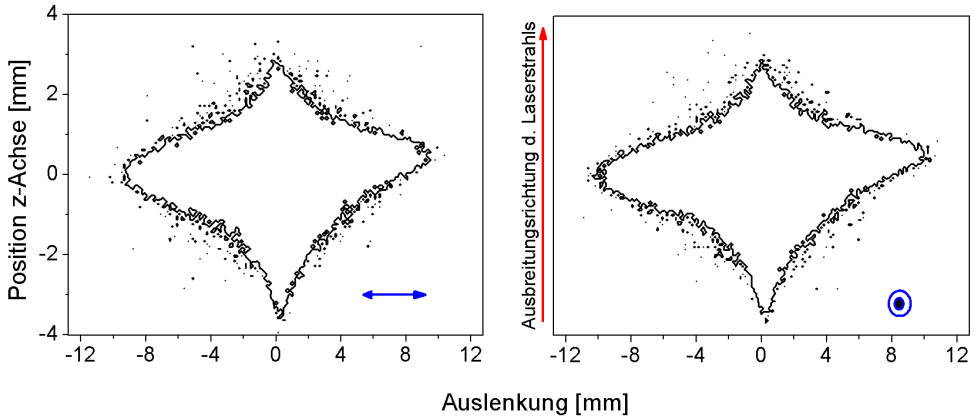

Abbildung 5.10: Polarisationsabhängigkeit der Beschleunigung von angeregten Heliumatomen bei einer Intensität von $8.8 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$. Links: Polarisation senkrecht zum Gasstrahl. Rechts: Polarisation parallel zum Gasstrahl.

der Polarisation des Laserfeldes, was Abbildung 5.10 zeigt: Hier sind die Konturen der am weitesten ausgelenkten Heliumatome bei senkrecht und parallel zum Gasstrahl polarisiertem Laserfeld dargestellt. Die Konturen sind nahezu identisch, insbesondere die Maximalauslenkung zeigt keine Polarisationsabhängigkeit.

Der Gasdruck im Heliumstrahl hat ebenfalls keinen Einfluss auf die Maximalgeschwindigkeiten, wie aus Abbildung 5.11 hervorgeht. Es sind Messungen bei vier verschiedenen Staudrücken in der Gasdüse dargestellt, bei denen die Laserintensität konstant $8.8 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ beträgt. Die Auslenkungen sind im vermessenen Druckbereich identisch, lediglich die Gesamtzahl der nachgewiesenen He^*-Atome nimmt zu. Dies ist konform mit dem theoretischen Modell; nur die Messung bei 20 mbar Staudruck weist eine erhöhte Zählrate aufgrund des hohen Hintergrunddrucks auf. Einen weitere Bestätigung der Theorie der Beschleunigung erhält man, wenn in den Gasstrahl hinter die Wechselwirkungszone eine Gitterstruktur eingebracht wird (Abb. 5.12). Bei einer Anregung der Atome ohne Beschleunigung wäre eine Abbildung der Gitterstruktur auf dem Detektor zu erwarten. Die Struktur ist jedoch in Richtung der Auslenkung verschmiert, nur auf der Laserstrahlachse ist die periodische Gitterstruktur zu erkennen. Durch die ponderomotorische Kraft werden die Heliumatome senkrecht zum Laserstrahl abhängig von ihrer Startposition beschleunigt, während parallel zum Laserstrahl die ursprüngliche Flugrichtung der Atome und damit auch die Abbildung der Gitterstege erhalten bleibt. Auf diese Weise entsteht das Streifenmuster in Abb. 5.12 als Verzerrung der Teilchenbahnen durch die Beschleunigung.

Diese Ergebnisse bestätigen das theoretische Modell, dass hier die Beschleunigung durch einen Intensitätsgradienten und der damit verbundenen ponderomotorischen Kraft hervorgerufen wird. Da der Zusammenhang zwischen der Radialgeschwindigkeit und der Laserintensität nun analytisch bekannt ist, lässt sich dieser Prozess zur Messung

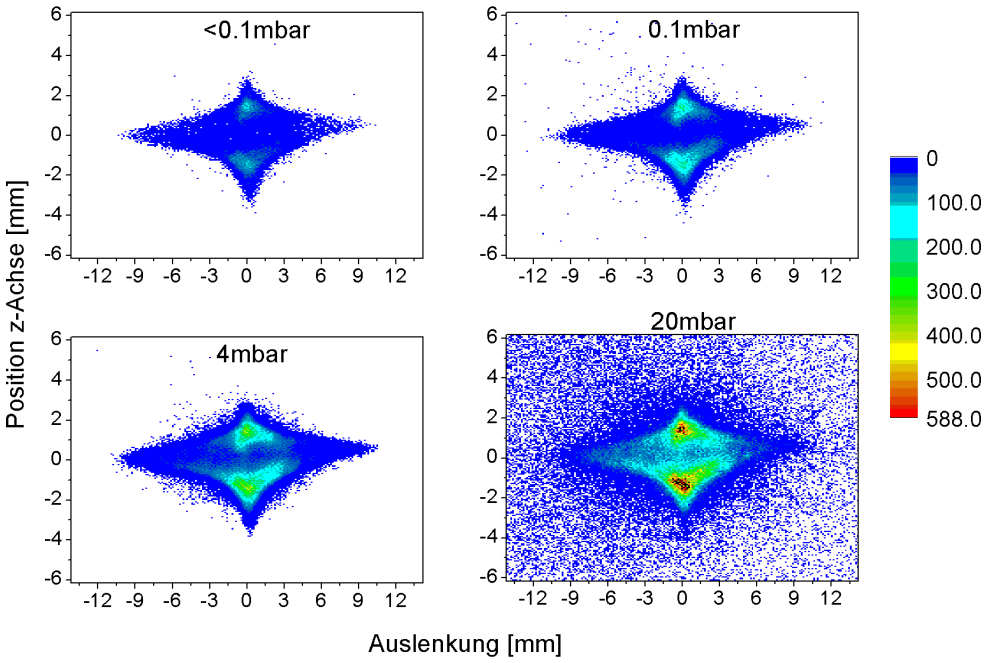

Abbildung 5.11: Einfluss der Teilchendichte im Gasstrahl auf die Beschleunigung neutraler Heliumatome bei einer Intensität von $8.8 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$. Zu jeder Messung sind die eingestellten Staudrücke in der Gasdüse angegeben.

von hohen Laserintensitäten, oder, falls die Pulsdauer unbekannt ist, von der Fluenz (Pulsenergie pro Fläche) im Bereich des Laserfokus nutzen. Zusätzlich erhält man noch Informationen über den Intensitätsverlauf entlang der Laserstrahlachse, man kann mit einem solchen Verfahren also in den Fokusbereich "hineinsehen". Voraussetzung ist jedoch ein annähernd gaußförmiges Strahlprofil des Lasers, da die analytische Formel dies beinhaltet. Im Vergleich zu anderen Methoden (z.B. Messung der Ionisationsraten) bietet dieses Verfahren aber einen direkten Zugang zum Intensitätprofil im Laserfokus.

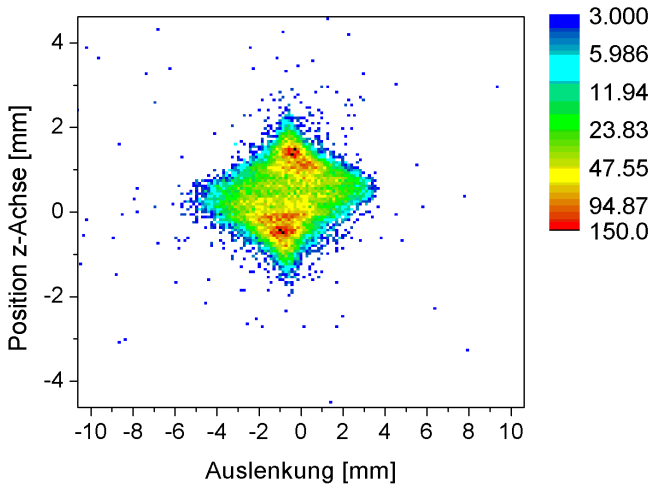

Abbildung 5.12: Auslenkung von beschleunigten Heliumatomen bei $2.3 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ (80fs) mit einem Gitter hinter der Wechselwirkungszone. Der Stegabstand des Gitters beträgt 0.25mm; das Gitter selbst ist 5mm hinter dem Laserfokus senkrecht zum Gasstrahl montiert.

6 Neutrale angeregte Molekülfragmente

In den vorangegangenen Kapiteln wurde der Prozess des Wiedereinfangs eines Elektrons durch ein Ion im Laser-Wechselfeld ausschließlich an den atomaren Systemen der Edelgase untersucht. Die Tunnelionisation und die sich anschließenden sekundären Rückstreuprozesse finden jedoch auch bei Molekülen in starken Laserfeldern statt [22], es wurde beispielsweise von *Cornaggia et al.*[21] nichtsequentielle Doppelionisation an kleinen Molekülen wie N_2 und C_2H_2 nachgewiesen. Im folgenden Kapitel wird untersucht, inwieweit die frustrierte Tunnelionisation als Effekt des Elektronenwiedereinfangs bei Molekülionisation auftritt. Bei Molekülen kommen zur Ionisation noch Dissoziationsprozesse wie Bond-Softening und Coulomb-Explosion hinzu, so dass der FTI-Prozess in Kombination mit diesen zu betrachten ist. Daher werden im folgenden einige Dissoziationsprozesse erläutert, die bei den später vorgestellten Experimenten mit angeregten neutralen Molekülfragmenten relevant sind.

6.1 Dissoziationsprozesse

Wird ein Molekül einem optischen Strahlungsfeld ausgesetzt, können einzelne oder alle Atome des Moleküls ionisiert werden; entweder durch Photonenabsorption (Photoionisation) oder, bei starken Laserfeldern, durch Feld- bzw. Tunnelionisation. Dadurch verändert sich auch das Molekülpotential so, dass das Molekül in einen antibindenden Zustand übergeht und dissoziiert. Die Fragmente erhalten abhängig vom Dissoziationsprozess und vom molekularen Zustand verschiedene kinetische Energien, über die Rückschlüsse auf den zugrundeliegenden Dissoziationsprozess gezogen werden können. Dabei ist die Polarisation des Laserpulses entscheidend: Die Dissoziation (von zweiatomigen Molekülen) findet fast ausschließlich bei Ausrichtung der Molekülachse parallel zur Polarisation des Laserfeldes statt [65]. Die in den Experimenten dieser Arbeit untersuchten Dissoziationsprozesse sind die Coulombexplosion und die Bindungsschwächung (*bond softening).*

6.1.1 Coulomb-Explosion

Wird ein zweiatomiges Molekül (z.B. Wasserstoff) doppelt ionisiert, kann es über den Kanal $H_2^{2+} \rightarrow H^+ + H^+$ zerfallen. Beide H^+-Atome „sehen“ einander als Coulombpotential einer positiven Ladung und stoßen sich stark ab. Die kinetische Gesamtenergie

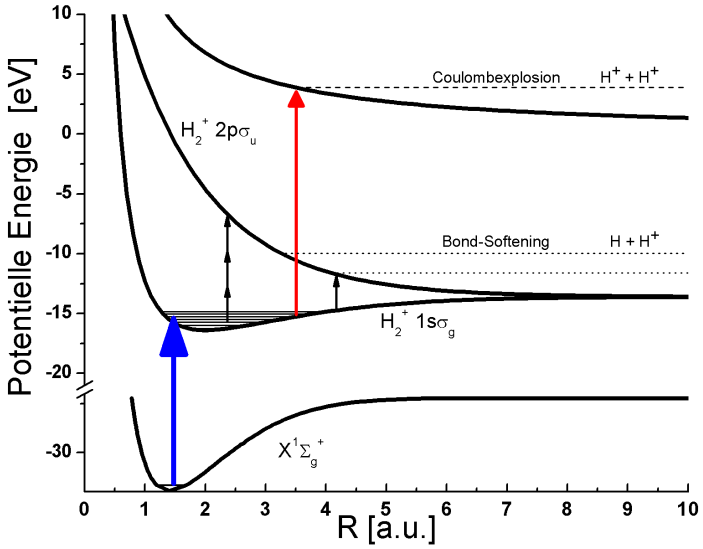

Abbildung 6.1: Potentialkurven(schematisch) für das Wasserstoffmolekül mit einigen möglichen Dissoziationskanälen

der Fragmente ist dementsprechend hoch:

$$E_{CE} = \frac{Q_1 Q_2}{R_e} \tag{6.1}$$

Sie hängt von den entstandenen Ionisationsstufen $Q_{1,2}$ (bei H_2: $Q_1 = Q_2$) und vom Kernabstand R_e der beiden beteiligten Atome ab. Die gemessenen kinetischen Energien sind jedoch niedriger als beim Gleichgewichtsabstand zu erwarten wäre [66]. Die Dissoziation folgt nicht einem nichtsequentiellen Doppelionisationsprozess, sondern einem sequentiellen. In Abbildung 6.1 ist dies durch Pfeile skizziert. Nachdem das erste Elektron entfernt worden ist(blauer Pfeil vom Grundzustand des H_2 in den Grundzustand des H_2-Ions), driften die Kerne auseinander, bevor das zweite Elektron ionisiert wird (roter Pfeil) und der eigentliche Prozess der Coulombexplosion stattfindet. Die kinetische Energie der Fragmente hängt dadurch von einem Kernabstand R_c ab, bei dem die Coulombexplosion bevorzugt stattfindet.

6.1.2 Bond-Softening

Es ist auch folgender Zerfallsprozess möglich, bei dem das Molekül nur einfach ionisiert wird und dann durch Übergehen in ein nicht bindendes Molekülpotential dissoziiert. Der Einfluss des Laserfeldes auf das Molekülpotential ist verantwortlich für diese

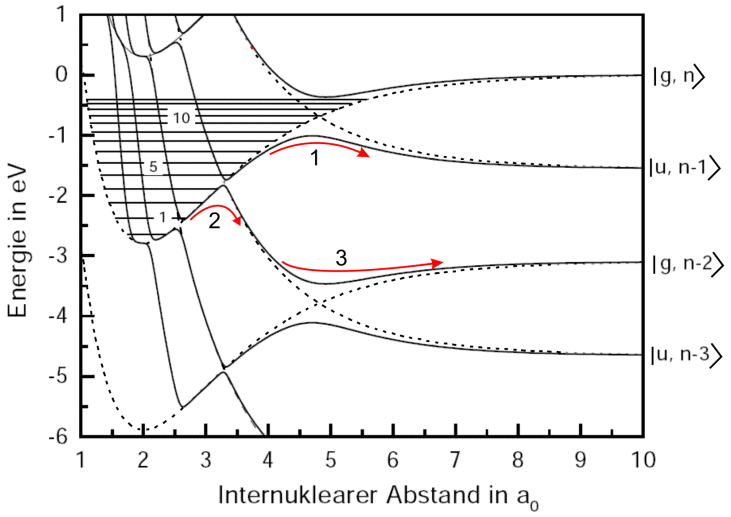

Abbildung 6.2: Dissoziationskanäle beim H_2^+-Ion aus den *dressed states* (durchgezogene Linien) in einem Laserfeld mit der Intensität von $10^{12}\,W/cm^2$ bei 800nm. Die gestrichelten Linien entsprechen den diabatischen Molekülpotentialen; die durchgezogenen waagrechten Linien stellen die Vibrationsniveaus des Grundzustandes dar. Die Skizze ist zur Illustration des Bond-Softening-Prozesses aus [67] entnommen und angepasst.

Dissoziationsprozesse. Anhand des Wasserstoffmoleküls sollen diese niederenergetischen Prozesse im folgenden verdeutlicht werden. Nach der Einfachionisation findet ein Ein- oder Dreiphotonenübergang zwischen dem bindenden und dem antibindenden Zustand in H_2^+ statt (schwarze Pfeile in Abb. 6.1). Die Dissoziationsenergie ergibt sich dabei aus der absorbierten Photonenenergie, allerdings ist hierbei der Einfluss des Laserfeldes auf die Molekülpotentiale wichtig.
Bei geringen Feldstärken werden die Molekülzustände des H_2 nur schwach beeinflusst und die Störung der Potentiale ist vernachlässigbar. Da die Kopplungsmatrix der Laser-Molekül-Wechselwirkung dann nur Diagonalelemente enthält, ist diese diabatisch (gestrichelte Kurven in Abb. 6.2). Bei starken Laserfeldern erscheinen auch Außerdiagonalelemente in der Matrix, die Molekülzustände koppeln an das Laserfeld und werden dadurch deformiert. Das Floquet-Theorem ermöglicht die Berechnung der entstehenden Zustände aus den ungestörten Zuständen $1s\sigma_g$ (Grundzustand von H_2^+) und $2p\sigma_u$ durch Transformation der zeitabhängigen Schrödingergleichung in ein System aus zeitunabhängigen Floquetzuständen. Diese Floquet-Zustände sind die Eigenfunktionen des Moleküls in einem zeitlich periodischen Feld. Jeder dieser Zustände ist das Produkt aus dem

ungestörten Molekülzustand und einem Photonenzahlzustand |n>: |g,n> und |u,n>. Sie werden als *photon-dressed states* bezeichnet und ergeben eine Reihe von parallel verschobenen Molekülpotentialen (durchgezogene Linien in Abb. 6.2). Durch die Dipolkopplung der Zustände entstehen vermiedene Kreuzungen (1,2 und 3 in Abb. 6.2) , wobei der Abstand von der Laserintensität abhängt. Durch Photonenabsorption kann das Molekül an diesen vermiedenen Kreuzungen in einen anderen adiabatischen Zustand übergehen; aufgrund der Paritätserhaltung sind nur Absorptionen von ungeraden Photonenzahlen möglich. Sobald das angeregte Vibrationsniveau ν des H_2^+ oberhalb des Potentialwalls des *dressed states* liegt, dissoziiert das Molekül (Weg 1 in Abb.6.2) und die freiwerdende kinetische Energie E_{KER} (bei Wasserstoff etwa 1eV) verteilt sich gleichmäßig auf die beiden Fragmente.

$$E_{KER} = E_\nu + \hbar\omega - E_{Diss} \tag{6.2}$$

Da durch ein externes Laserfeld die Molekülbindung abgeschwächt wurde, wird dieser Prozess als *Bond Softening* bezeichnet. Er wurde erstmals von Bucksbaum et al. an molekularem Wasserstoff beobachtet [68]. Es existiert auch ein komplementärer Prozess, bei dem ein stabiler Zustand des Molekülions bei einem größeren Nukleonenabstand entsteht. Durch die adiabatische Verformung der Potentiale können auch neue Potentialminima entstehen, in denen ein Wellenpaket eines Vibrationszustandes eingefangen werden kann. Das Laserfeld stärkt in diesem Fall die Molekülbindung, was als *Bond Hardening* oder *Vibrational Trapping* bezeichnet wird [69, 68].
Sowohl bei der Coulombexplosion als auch beim Bond-Softening wird zumindest ein Wasserstoffatom ionisiert. Dies ist eine notwendige Bedingung für einen möglichen Wiedereinfang eines Elektrons, welcher im nächsten Abschnitt an Wasserstoff untersucht wird.

6.2 Angeregte neutrale Fragmente bei der Dissoziation von Wasserstoffmolekülen

Die Voraussetzung für den experimentellen Nachweis von angeregten neutralen Molekülen und deren Fragmenten ist wie bei Edelgasatomen eine ausreichende Anregungsenergie. Das Vorhandensein von neutralen Fragmenten nach einer Wasserstoffdissoziation ist bekannt [70], allerdings ohne Unterscheidungsmöglichkeit zwischen angeregten Fragmenten und solchen im Grundzustand. Die niedrigsten angeregten Zustände von H haben bereits die notwendige Anregungsenergie um mit einem MCP nachgewiesen zu werden, vorausgesetzt, die Zustände sind bezüglich der Flugzeit langlebig genug. Der 2s-Zustand von atomarem Wasserstoff hat beispielsweise eine Anregungsenergie von 10eV und ist metastabil (Lebensdauer ca. 0.12s). Für die Messungen an Wasserstoffgas wird dieselbe Apparatur wie bei den Edelgasmessungen verwendet (Abb. 6.3). Zusätzlich besteht die Möglichkeit, mit einem zweiten MCP-Detektor Fragmente senkrecht zum Gasstrahl

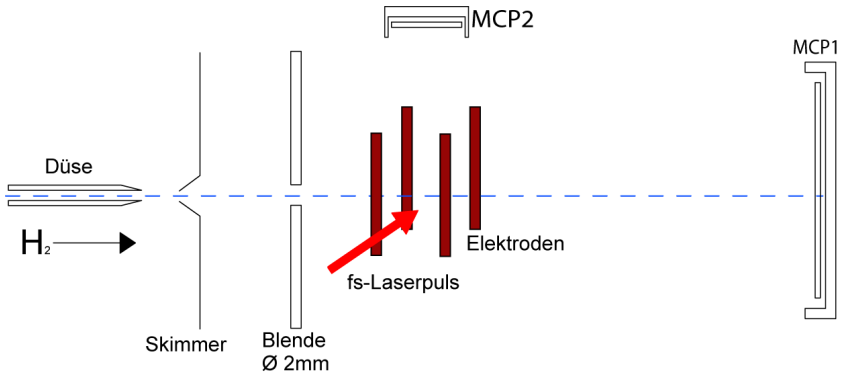

Abbildung 6.3: Skizze der Apparatur mit zwei Detektoren für die Messungen an Wasserstoffmolekülen

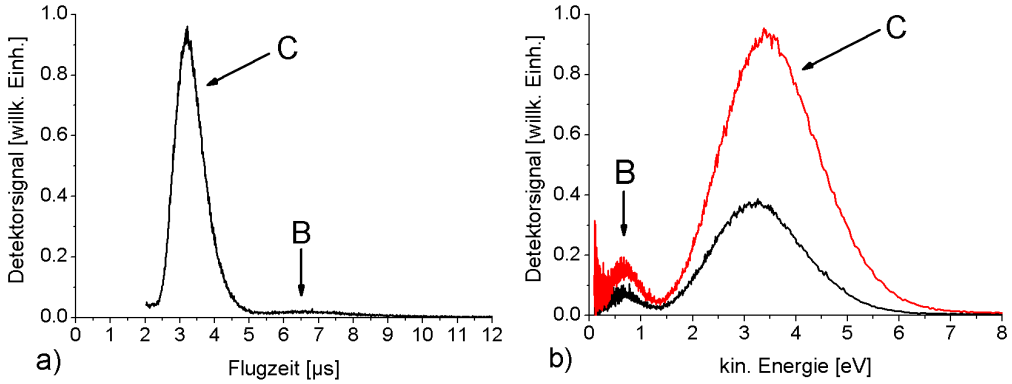

Abbildung 6.4: Flugzeit (a) und Energiespektrum (b) von neutralen Fragmenten des Wasserstoffmoleküls bei einer Laserintensität von $3.7 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ (−) und $5 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ (−). Das Laserfeld ist senkrecht zum Gasstrahl polarisiert, die H*-Fragmente wurden mit dem zweiten MCP-Detektor senkrecht zum Gasstrahl gemessen.

zu messen. Dieses MCP (MCP2) befindet sich im Abstand von 8.3cm oberhalb des Gasstrahls senkrecht über dem Laserfokuspunkt.

In Abbildung 6.4a ist das Flugzeitspektrum von neutralem Wasserstoff nach Wechselwirkung mit einem 40fs-Laserpuls ($I = 3.7 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$) zu sehen. Dieses Spektrum wurde mit dem zusätzlichen MCP senkrecht zum Gasstrahl gemessen; die Flugzeiten von neutralem H* in Richtung des Strahls liegen bei maximal 20 bis 30 μs. Diese Flugzeiten sind im Vergleich zu denen von neutralen Edelgasatomen deutlich kürzer ($t_{TOF} < 50\mu$s gegenüber $200\mu s$ beim leichtesten Edelgas Helium). Die zusätzliche Energie können die Teilchen nicht aus der Gasstrahlgeschwindigkeit erhalten haben. Zur

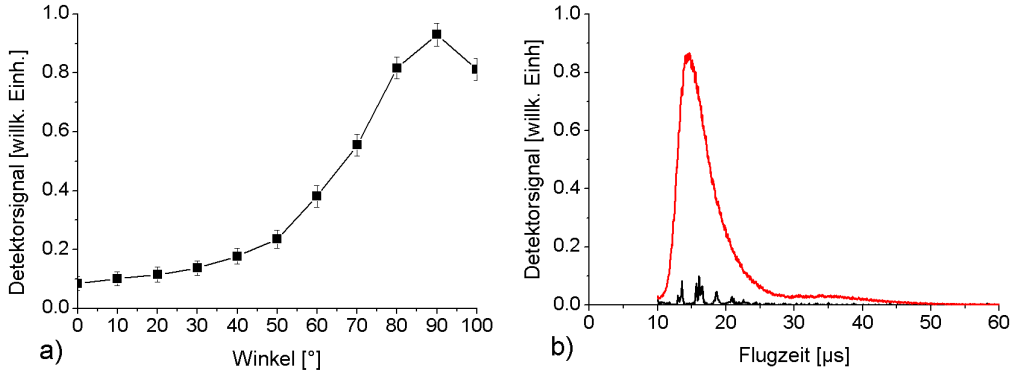

Abbildung 6.5: Polarisationsabhängigkeit neutraler angeregter H_2-Molekülfragmente: a) Variation der linearen Laserpolarisation (0°: Pol. senkrecht zum Gasstrahl, 90°: Pol. parallel zum Gasstrahl), b) Flugzeitspektrum bei linearer (−) und zirkularer (−) Polarisation (Intensität: $4.3 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$). Gemessen wurde mit dem Detektor MCP2.

Entfernung von Ionen und Elektronen, die das Messsignal überlagern würden, liegt an der verwendeten Elektrodenanordnung, in diesem Fall der Plattenstapel in Wiley-Mclaren-Anordnung, eine konstante Spannung an. Durch Variieren dieses elektrischen Feldes lässt sich auch feststellen, welche Anteile im Spektrum neutralen Partikeln zuzuordnen sind und welche zu geladenen Teilchen, die das Spektrum überlagern, gehören. Durch die kürzeren Flugzeiten ist die Wahl der richtigen Feldspannungskonfiguration sehr viel kritischer als bei den Messungen an Edelgas. In den Experimenten kommen daher auch die Feldstäbe zum Einsatz, wenn dadurch ein durch Ionen und Elektronen möglichst ungestörtes Spektrum gemessen werden kann.

Durch Messungen mit verschiedenen Feldstärken ist sichergestellt, dass es sich bei den in Abb.6.4a dargestellten Messdaten um neutrale angeregte Atome handelt. Des Weiteren ist zu klären, ob es sich bei diesen erstens um Produkte einer Moleküldissoziation handelt und ob zweitens der Prozess, der zur Entstehung der angeregten Zustände führt, ein Einfangprozess nach dem FTI-Modell ist. Letzteres ergibt sich aus Abbildung 6.5b), wo zwei Flugzeitspektren einer Messung an Wasserstoff zu sehen sind. Das eine Spektrum (rot im Graph) wurde mit einem linear polarisiertem Laserpuls aufgenommen, das andere (schwarz) mit einem zirkular polarisiertem Puls gleicher Feldstärke (entsprechend doppelte Pulsenergie). Während bei linearer Polarisation ein deutliches H^*-Detektorsignal zu sehen ist, verschwindet dieses vollständig bei zirkular polarisiertem Licht. Die einzelnen Signalspitzen sind Störereignisse von Ionen und Elektronen und verschieben sich bei Änderung des elektrischen Abzugsfeldes. Die hohen kinetischen Energien der gemessenen Teilchen geben einen ersten Hinweis darauf, dass hier zusätzlich auch Dissoziationspro-

zesse stattfinden. Eine Messreihe zur Drehung der Polarisationsebene des Laserpulses (Abb.6.5a) betätigt dies: Eine Polarisationsdrehung aus der Gasstrahlebene (und damit aus der Detektionsebene) heraus ergibt einen starken Signalabfall. Die Zählraten werden im Zeitfenster von 10 bis 30 μs integriert und für jede Winkelstellung aufgetragen. Wie bereits im vorherigen Kapitel erwähnt, dissoziieren Moleküle unter Laserfeldeinfluss in Richtung dessen Polarisation. Zeigt diese nicht in Richtung Detektor, verfehlen die Fragmente durch die im Vergleich zur thermischen Gasstrahlgeschwindigkeit größere kinetische Energie den Detektor. Messungen von ionischen Fragmenten [71, 72] zeigen diese Winkelabhängigkeit für Prozesse wie Bond-Softening und Coulombexplosion ebenfalls. In den hier vorgestellten Experimenten konnte dies auch durch eine Messung mit dem zusätzlichen MCP-Detektor senkrecht zum Strahl bestätigt werden.
Zur Identifikation der vorliegenden Dissoziationsprozesse wird das Flugzeitspektrum 6.4a in ein Energiespektrum 6.4b transformiert. Dazu ist die Zeitachse auf eine Energieskala umzurechnen:

$$E_{kin} = 1/2 \cdot m_H \cdot ((s/t) - v_s)^2 \tag{6.3}$$

Über

$$df(dE) = \frac{df}{dt}\frac{dt}{dE} \tag{6.4}$$

wird die y-Achse entsprechend mittransformiert. Aus den Messungen, die mit dem MCP-Detektor in Richtung des Gasstrahls aufgenommen wurden, muss die Geschwindigkeitsverteilung (Gl. 3.16) aus dem Energiespektrum herausgerechnet werden. Die Strömungsgeschwindigkeit des Wasserstoffgasstrahls beträgt v_s = 1800 m/s, und die sich daraus ergebende Geschwindigkeitsverteilung des Gasstrahls (Gl. 3.16) kann durch eine Entfaltung aus dem Messsignal entfernt werden. Da die Breite der Geschwindigkeitsverteilung des Gasstrahls viel kleiner ist als die der dissoziierten Molekülfragmente, genügt es jedoch, bei der Transformation vom Flugzeit- in das Energiespektrum lediglich die Strömungsgeschwindigkeit v_s abzuziehen. Der dadurch entstehende Fehler in der Energieverteilung ist vernachlässigbar.
Das Energiespektrum zeigt zwei Maxima, eines mit niedriger Energie von 0.65eV und geringer Breite ΔE=0.3eV und eine breite Verteilung um ein Maximum bei etwa 3.5eV. Der Energiebereich kleiner als 0.1eV kann nicht aufgelöst werden, da die neutralen Atome mit diesen geringen kinetischen Energien über einen großen Zeitbereich verteilt sind und vom Untergrundrauschen des Detektorsignals überlagert werden.

Vergleicht man dieses Energiespektrum mit Literaturdaten von ionischen Fragmenten, zum Beispiel aus *M.R. Thompson et al.*[23], Fig. 4a, zeigen sich Übereinstimmungen in den gemessenen Fragmentenergien. Sowohl im Ionenfragmentspektrum (Abb. 6.6) als auch im Spektrum der neutralen angeregten Fragmente treten ein niederenergetischer und ein breiter hochenergetischer Peak auf. Ersterer wird in [23] mit dem Bond-Softening-Prozess identifiziert, letzterer mit der Coulombexplosion. Diese Zuordnung ist auch für die Spektren von neutralen Wasserstofffragmenten gültig. Insbesondere konnte in unserer

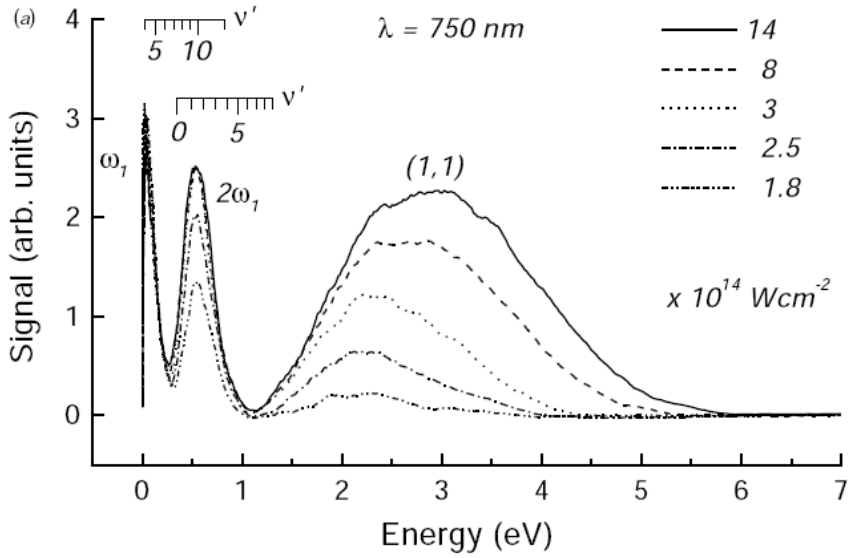

Abbildung 6.6: Spektrum der kinetischen Energie von Wasserstoffionen nach der Dissoziation durch einen 55fs-Laserpuls bei 750nm. Entnommen aus Quelle [23].

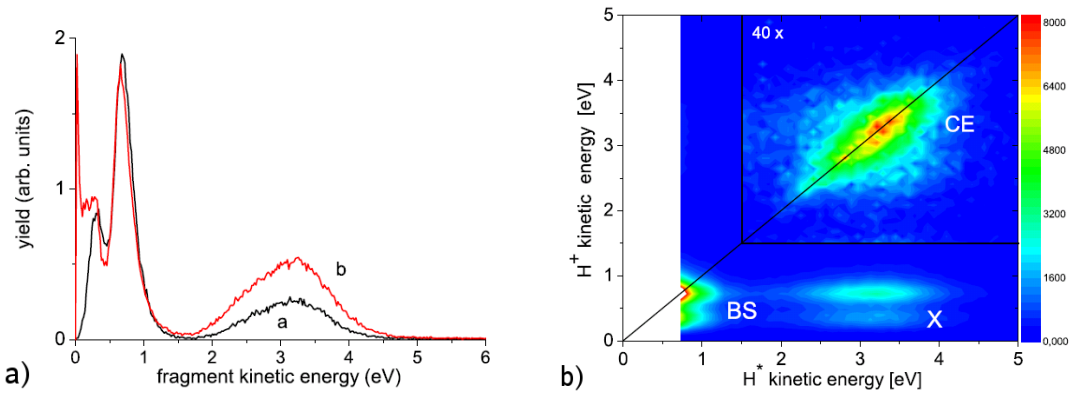

Abbildung 6.7: Ergebnisse einer korrelierten Messung der Wasserstoffionen und angeregten neutralen Fragmenten von Wasserstoff, entnommen aus *Manschwetus et al.* [73]. a) Energiespektrum von H^+ (a) und H^* (b) bei $3 \cdot 10^{14}\, W/cm^2$ b) Korreliertes Energiespektrum, CE zeigt den Bereich der Coulombexplosion, BS das Bondsoftening.

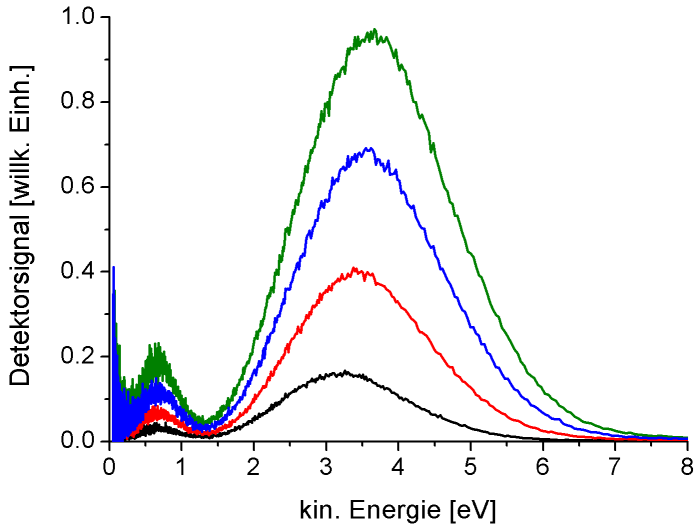

Abbildung 6.8: Intensitätsabhängigkeit neutraler angeregter H_2-Molekülfragmente: Verschiebung des Coulombexplosionssignals bei steigender Intensität (Detektor MCP2): (–): $3.7 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$, (–): $4.9 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$, (–): $6.1 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$, (–): $7.3 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$

Arbeitsgruppe (*Manschwetus et al.* [73]) mit einer korrelierten $H^+ - H^*$-Messung (Abb. 6.7b) gezeigt werden, dass ein angeregtes neutrales Wasserstoffatom mit einer kinetischen Energie um 3eV immer mit einem Wasserstoffion zusammen auftritt. Das Ionenspektrum in Abb. 6.7a zeigt zudem dieselben Energien für die einzelnen Dissoziationskanäle wie das dazugehörige Neutralenspektrum und auch das Spektrum in Abbildung 6.4b. Diese Koinzidenz von Wasserstoffionen und H^* zeigt, dass bei der Dissoziation von Wasserstoff in starken Laserfeldern die Coulombexplosion der Fragmente stattfindet, wobei eines der Fragmente durch Wiedereinfang eines Elektrons neutralisiert wird.
Zunächst wird das Molekül zu H_2^+ ionisiert. Die beiden Protonen beginnen auseinanderzulaufen, das Wellenpaket der Kerne propagiert in kurzer Zeit (ca. 7fs) zu größeren Kernabständen R. Durch den Prozess der *Enhanced Ionization* [74] wird bei R=8-10 a.u. das zweite Elektron entfernt und im Laserwechselfeld beschleunigt. Die zweite Ionisationsstufe ist auch durch sequentielle Ionisation bei ausreichend hohen Laserfeldstärken möglich. Die beiden Protonen stoßen sich daraufhin ab, es kommt zur Coulombexplosion, wobei die kinetische Energie der einzelnen Ionen von R abhängt.

$$H_2 \xrightarrow{nh\nu} H_2^+ + e^- \xrightarrow{mh\nu} H^+ + \overbrace{H^+ + e^-}^{FTI} + e^- \rightarrow H^+ + H^* + e^- \tag{6.5}$$

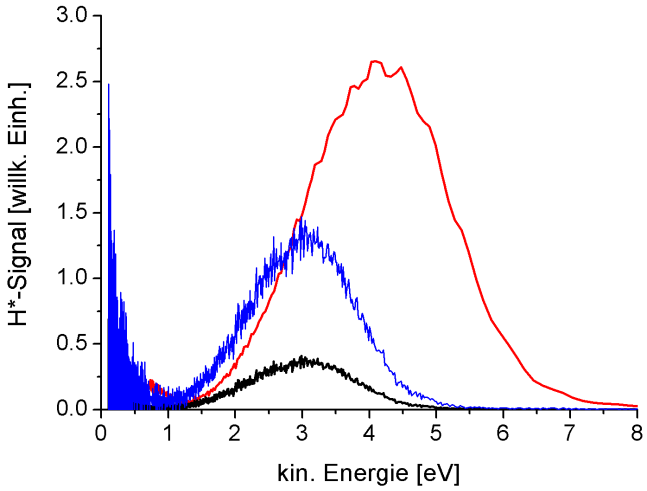

Abbildung 6.9: Vergleich der gemessenen Ausbeute an angeregten Wasserstoffatomen nach 8.3cm (–) und 38cm (–) Flugstrecke. Die Laserintensität beträgt $9.8 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$, die Polarisationsachse ist auf den jeweils aktiven Detektor gerichtet. (–) ist das mit dem Raumwinkelverhältnis von 3.6 skalierte Spektrum von MCP1.

Dies erklärt die große energetische Breite des Peaks C in Abb. 6.4b. Bei wachsender Laserintensität wird der sequentielle Ionisationsprozess stärker und die Coulombexplosion findet bei geringeren Kernabständen statt. Dies bewirkt, wie in Abb. 6.8a zu sehen ist, eine Verschiebung des Maximums der Fragmentenergie.
Bei der Betrachtung der Energiespektren ist zudem der Einfluss des Raumwinkels nicht zu vernachlässigen, der sich mit Wahl des Detektors (MCP1 oder MCP2) ändert. Bevor die Coulombexplosion mit dem nachfolgenden Wiedereinfang theoretisch berechnet wird, soll kurz der Einfluss des Raumwinkels und auch der unterschiedlichen Flugstrecken erörtert werden.

Einfluss von Detektionsraumwinkel und Lebensdauer der Zustände

Vergleicht man den Anteil der Coulombexplosion bei den beiden verschiedenen Flugstrecken (8.3 und 38cm), dargestellt in Abb. 6.9, sieht man eine starke Erhöhung des Spektrums bei der kurzen Flugstrecke. Das Maximum der Coulombexplosion verlagert sich zudem zu höheren Energien. Es werden mehr neutrale angeregte H-Atome nachgewiesen, die bei geringen Kernabständen dissoziiert sind. Der niederenergetische Bereich ist im Spektrum der langen Driftstrecke ist um 3 eV zentriert und beinhaltet weniger detektierte Atome. Die Ursache für die geringe Gesamtausbeute bei der langen Driftstrecke ist zum einen der kleinere Detektionsraumwinkel (0.035 sr) von MCP1

im Gegensatz zu 0.12 sr von MCP2, zum anderen aber auch ein Zerfallsprozess der angeregten Zustände, ähnlich dem bei angeregten Edelgasatomen. Dies ist aus dem blauen Spektrum in Abb. 6.9 ersichtlich, welches das mit dem Raumwinkelverhältnis (MCP2/MCP1) skalierte Spektrum von MCP1 darstellt. Da der metastabile Zustand 2s von Wasserstoff mit seiner Lebensdauer im ms-Bereich in jedem Fall die Detektoren erreicht, ist der Signalabfall auf der langen Flugstrecke dem Zerfall von Rydbergzuständen zuzuordnen. Der Signalabfall der blauen Kurve in Abb. 6.9 ist außerdem asymmetrisch, hauptsächlich die Fragmente mit hohen kinetischen Energien werden nach der langen Flugstrecke nicht detektiert. Dies ist ein Hinweis darauf, dass bei einer Coulombexplosion bei niedrigen Kernabständen möglicherweise hauptsächlich Zustände mit niedrigem n bevölkert werden. Eine experimentelle Bestätigung dieser These steht jedoch noch aus.
Erhält das Elektron im Laserfeld nicht genügend Driftenergie, kann es durch den FTI-Prozess bei der Rückkehr einem der Wasserstoffionen in einen angeregten Zustand eingefangen werden. Durch die kurzen Flugzeiten der angeregten Atome erreicht ein Teil im angeregten Zustand den Detektor, bevor der Zustand zerfällt. Der energiebestimmende Coulombexplosionsprozess findet vor dem FTI-Prozess statt, was die Ähnlichkeit der Ionen- und Neutralenspektren erklärt. Damit ist auch eine theoretische Berechnung des FTI-Prozesses unter Berücksichtigung der Coulombexplosion möglich, was im folgenden Abschnitt beschrieben wird.

6.2.1 Monte-Carlo-Simulation der FTI bei Wasserstoff

Analog zum Heliumatom kann auch der FTI-Prozess beim Wasserstoffatom durch eine Monte-Carlo-Simulation berechnet werden. Dazu werden klassische Bewegungsgleichungen aufgestellt, die allerdings um den Dissoziationsprozess der Coulombexplosion erweitert werden müssen. Der Gleichung 4.5 sind die Bewegung der Wasserstoffkerne, die sich durch die Coulombkraft abstoßen, hinzuzufügen, was folgendes Gleichungssystem ergibt:

$$
\begin{aligned}
\ddot{x_1}(t) - \frac{x_1 - x_2}{(A_{12})^{3/M}} + \frac{x_1 - x_3}{(A_{13})^{3/M}} + \frac{F_0}{M} e^{-(t-t_0)^2/t_b^2} \omega_L t = 0 \\
\ddot{y_1}(t) - \frac{y_1 - y_2}{(A_{12})^{3/M}} + \frac{y_1 - y_3}{(A_{13})^{3/M}} = 0 \\
\ddot{z_1}(t) - \frac{z_1 - z_2}{(A_{12})^{3/M}} + \frac{z_1 - z_3}{(A_{13})^{3/M}} = 0
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
\ddot{x_2}(t) - \frac{x_2 - x_1}{(A_{21})^{3/M}} + \frac{x_2 - x_3}{(A_{23})^{3/M}} + \frac{F_0}{M} e^{-(t-t_0)^2/t_b^2} \omega_L t = 0 \\
\ddot{y_2}(t) - \frac{y_2 - y_1}{(A_{21})^{3/M}} + \frac{y_2 - y_3}{(A_{23})^{3/M}} = 0 \\
\ddot{z_2}(t) - \frac{z_2 - z_1}{(A_{21})^{3/M}} + \frac{z_2 - z_3}{(A_{23})^{3/M}} = 0
\end{aligned}
\tag{6.6}
$$

$$
\begin{aligned}
\ddot{x_3}(t) + \frac{x_3 - x_1}{(A_{31})^{3/2}} + \frac{x_3 - x_2}{(A_{32})^{3/2}} - \frac{F_0}{M} e^{-(t-t_0)^2/t_b^2} \omega_L t = 0 \\
\ddot{y_3}(t) + \frac{y_3 - y_1}{(A_{31})^{3/2}} + \frac{y_3 - y_2}{(A_{32})^{3/2}} = 0 \\
\ddot{z_3}(t) + \frac{z_3 - z_1}{(A_{31})^{3/2}} + \frac{z_3 - z_2}{(A_{32})^{3/2}} = 0
\end{aligned}
$$

mit $A_{ij} = \sqrt{(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2 + (y_i - y_j)^2}$ und den Anfangsbedingungen

$$
\begin{aligned}
\dot{x_1}(t_{ion}) = \dot{y_1}(t_{ion}) = \dot{z_1}(t_{ion}) = 0 \\
\dot{x_2}(t_{ion}) = \dot{y_2}(t_{ion}) = \dot{z_2}(t_{ion}) = 0 \\
x_1(t_{ion}) = R/2 \cdot cos\theta \\
y_1(t_{ion}) = R/2 \cdot sin\theta \\
x_2(t_{ion}) = -R/2 \cdot cos\theta \\
y_2(t_{ion}) = -R/2 \cdot sin\theta \\
z_1(t_{ion}) = z_2(t_{ion}) = 0
\end{aligned}
\tag{6.7}
$$

für die beiden Protonen und

$$\begin{aligned} \dot{x_3}(t_{ion}) &= \dot{z_3}(t_{ion}) = 0 \\ \dot{y_3}(t_{ion}) &= p_\perp \\ x_3(t_{ion}) &= y_3(t_{ion}) = z_3(t_{ion}) = 0 \end{aligned} \tag{6.8}$$

für das Elektron. M=1836 ist die Protonenmasse in atomaren Einheiten. Man geht vom bereits einfach ionisierten Wasserstoffmolekül H_2^+ aus, bei dem die Kerne bei einem Abstand von R_0 noch in Ruhe seien. Die Tunnelionisationsrate des zweiten Elektrons kann näherungsweise durch die ADK-Rate 2.15 berechnet werden [75]: auch wenn die Ionisationsrate eines Moleküls mit zwei Kernen betrachtet wird, kann man die Rate annähernd durch Gleichung 2.15 beschreiben. Wie auch beim Heliumatom findet die Tunnelionisation im Laserfeld in der Nähe eines Feldmaximums zum Zeitpunkt t_{ion} statt. Danach kann das Elektron einen Querimpuls $p_\perp$ haben. Für die Simulationsrechnung werden t_{ion} und $p_\perp$ zufällige Werte aus der statistischen Normalverteilung zugewiesen sowie ein zufälliger Kernabstand R aus einer Gaußverteilung um R_0 gewählt. Damit können die Bewegungsgleichungen für die Protonentrajektorien $\vec{r_{p1}}(t) = (x_1, y_1, z_1)$ und $\vec{r_{p2}}(t) = (x_2, y_2, z_2)$ und für die Elektronentrajektorie $\vec{r_e}(t) = (x_3, y_3, z_3)$ numerisch gelöst werden. Daraus ergeben sich auch die Impulse $\vec{p_{p1}}(t), \vec{p_{p2}}(t)$ und $\vec{p_e}(t)$. Bei der Auswertung der Gesamtenergie des Systems nach einer Zeit t=100000 a.u. sind zwei mögliche Endzustände zu unterscheiden. Zum einen kann das Elektron entfernt worden sein, die Gesamtenergie des Systems ist positiv und die Protonen stoßen sich im Coulombpotential ab. Zum anderen kann das Elektron von einem Proton eingefangen werden und in einem gebundenen Zustand enden. Die Gesamtenergie des Systems aus Proton und dazugehörigem Elektron ist negativ und kann einer effektiven Quantenzahl ν zugeordnet werden. Es entsteht ein Proton-H-Atom-Paar, dessen Impulse die kinetische Energie darstellen, die letztendlich gemessen wird. Diese Rechenschritte werden in einer Monte-Carlo-Simulation über einige tausend Zyklen wiederholt und die Impulswerte für Ionenfragmente und neutrale angeregte Fragmente getrennt aufgezeichnet.

In Abbildung 6.10 sind die berechneten Trajektorien der Wasserstoffatome und des Elektrons nach der Dissoziation von H_2^+ dargestellt. Man sieht, wie sich die beiden Protonen nach der Entfernung des Elektrons in einer Coulombexplosion abstoßen und voneinander entfernen. Das Elektron wird in großem zeitlichen Abstand von der Dissoziation vom Laserpuls zu einem Kern zurückbeschleunigt und eingefangen. Die Ergebnisse der Monte-Carlo-Simulation sind in Abbildung 6.11 zu sehen. Sie zeigt die Häufigkeit des Auftretens eines $H^+ - H^*$-Paares bei unterschiedlichen Anfangskernabständen R_0 (1 a.u. Breite). Zum Vergleich ist ein Energiespektrum einer Messung mit der gleichen Intensität von $5 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ dargestellt. Das Maximum des Energiespektrums verschiebt sich mit zunehmenden Kernabstand zu kleineren Energiewerten, die Breite der Verteilung wird zudem schmaler. Bei einem Kernabstand von 2 bis 3.5 a.u. liegt das Maximum der kinetischen Energie der Fragmente bei etwa

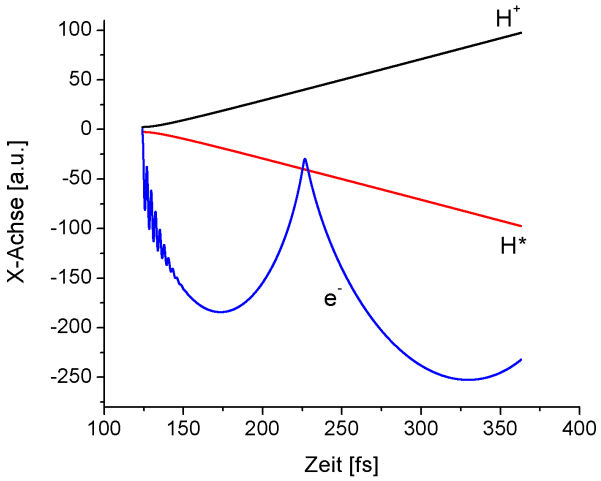

Abbildung 6.10: Trajektorien aus der MC-Simulation. Dargestellt sind die Bahnkurven der beiden Protonen (− und −) und des Elektrons (−). Das Elektron kehrt zu einem Proton zurück und wird in einen angeregten Zustand eingefangen.

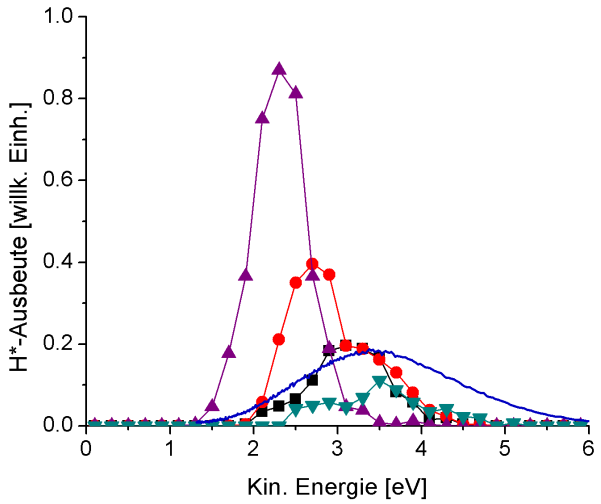

Abbildung 6.11: Vergleich der MC-Simulationsergebnisse bei verschiedenen Kernabständen mit experimentellen Daten (dunkelblau) bei einer Laserintensität von $5 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$. (▼): R=2.5 a.u., (■): R=3.5 a.u., (●): R=4 a.u., (▲): R=6 a.u.

3.5eV, was dem Wert für die Coulombexplosion aus den Experimenten entspricht. Dieser Abstand ist zu gering für den Prozess der *enhanced ionization*, welcher ab R=5 a.u. auftritt. Demnach liegt bei den hohen verwendeten Laserintensitäten sequentielle Doppelionisation innerhalb eines Laserpulses statt. Die Messdaten lassen sich jedoch nicht auf einen bestimmten Kernabstand anpassen, die energetische Verteilung ist so breit, dass zum Spektrum auch, aber nicht ausschließlich, der Prozess der *enhanced ionization* beiträgt.
Mit dem Modell der Rückkehr und des Einfangs des Elektrons vom Ion kann also die Besetzung neutraler angeregter Zustände eines H-Atoms nach der Dissoziation erklärt werden. Die Dissoziation selbst findet hauptsächlich bei Kernabständen in einem Bereich von etwa 2.5-3.5 a.u. statt, was die Breite der Energieverteilung der Messergebnisse zeigt. Über den eigentlichen Zerfallsprozess macht das Modell keine Aussage, nur über die Wahrscheinlichkeit, nach der Coulombexplosion eines Wasserstoffions H_2^+ ein H^*-H^+-Paar zu detektieren.

Angeregte Wasserstoffatome nach Bond-Softening-Zerfall

Nach der Ionisation zu H_2^+ kann das Molekülion auch über den Bond-Softening-Prozess dissoziieren, die Produkte sind ein neutrales H-Atom im Grundzustand, ein H-Ion und das Elektron, welches im Laserwechselfeld beschleunigt und wieder rückgestreut wird.

$$H_2 \rightarrow H_2^+ + e^- \rightarrow H + H^+ + e^- \rightarrow H + H^* \tag{6.9}$$

Auch hier kann das Elektron eingefangen werden, das H-Ion wird zu einem neutralen H-Atom in einem angeregten Zustand, während das zweite Atom im Grundzustand verbleibt. Die kinetische Gesamtenergie von 1.3eV (0.65 eV pro Nukleon) wird durch die Anzahl der beim Dissoziationsprozess absorbierten Photonen bestimmt. Bei niedrigen Laserintensitäten $< 10^{14}\, W/cm^2$ entsteht aus den diabatischen Molekülzuständen zunächst eine vermiedene Ein-Photonen-Kreuzung (Nr. 1 in Abb. 6.2). Wasserstoffmoleküle, die hierüber zerfallen, ergeben Fragmente mit kinetischen Energien von 0.2 eV, die jedoch mit dem hier verwendeten Spektrometer nicht aufgelöst werden. Im Ionenspektrum der korrelierten Messung aus [73] (Abb. 6.7a) ist dieser Energiepeak hingegen zu sehen. Bei Intensitäten oberhalb von $10^{14}\, W/cm^2$ entsteht eine weitere vermiedene Kreuzung durch 3-Photonen-Absorption zwischen den Zuständen |g, n> und |u, n-3> (Nr. 2 in Abb. 6.2), bei der Vibrationszustände von $\nu = 4$ und höher im Kontinuum liegen. Bei größeren Kernabständen liegt jedoch noch eine Ein-Photonen-Kreuzung (zwischen |u, n-3> und |g, n-2>, Nr. 3 in Abb. 6.2), bei der ein Photon wieder emittiert wird. Effektiv entsteht das Bond-Softening-Signal bei 0.65 eV durch eine 2-Photonen-Absorption. Daher wird dieser Peak, der sich auch im Ionenfragmentspektrum (Abb. 6.6) wiederfindet, als 2ω-Peak bezeichnet [23], der Dissoziationsprozess mitunter auch *Above Threshold Dissociation*

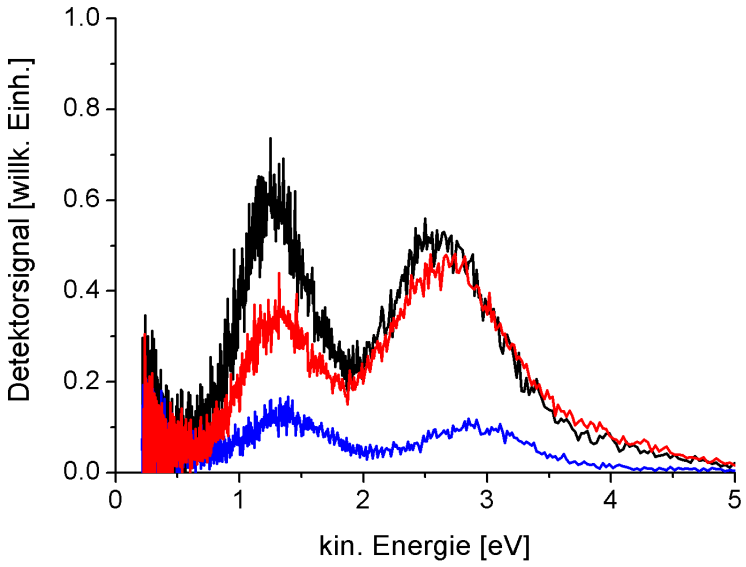

Abbildung 6.12: Energiespektren der Wasserstoffdissoziation bei $\lambda = 400$nm. (−): $7.5 \cdot 10^{14}\, W/cm^2$, (−): $6.2 \cdot 10^{14}\, W/cm^2$, (−): $5.2 \cdot 10^{14}\, W/cm^2$

(ATD)[67].
Denkbar wäre auch ein Dissoziationsprozess, bei dem das Wasserstoffmolekül in ein Atom im Grundzustand und ein Ion durch Bond-Softening zerfällt [76]. Bei einem Kernabstand von ca. 5 a.u. findet jedoch eine Mehrphotonenabsorption des neutralen Fragments in einen angeregten Zustand statt.

$$H_2 \rightarrow H_2^+ + e^- \rightarrow H + H^+ + e^- \overset{n\,\hbar\omega}{\rightarrow} H^* + H^+ \tag{6.10}$$

Dies würde im Koinzidenz-Spektrum 6.7b zu korrelierten Ereignissen im Bond-Softening-Signal (BS) führen, diese sind jedoch nicht entlang der Diagonalen ausgerichtet. Daher ist davon auszugehen, dass das Signal bei 0.6eV in Abb. 6.4 dem Prozess 6.9 zugeordnet werden kann.

Dissoziation bei 400nm

Wie auch bei Edelgasen sind auch bei der Wasserstoffdissoziation mit der zweiten Harmonischen eines Ti:Sa-Laserpulses ($\lambda = 400nm$) neutrale angeregte Fragment nachweisbar. Energiespektren für drei verschiedene Intensitäten sind in Abb. 6.12 dargestellt. Alle weisen zwei Maxima bei 1.3eV und ca. 2.6 eV auf, die beide näherungsweise im gleichen Verhältnis nachgewiesen werden. Bei der Coulombexplosion zeigt sich eine bevorzugte Dissoziation bei größeren Kernabständen, was das Energiemaximum auf

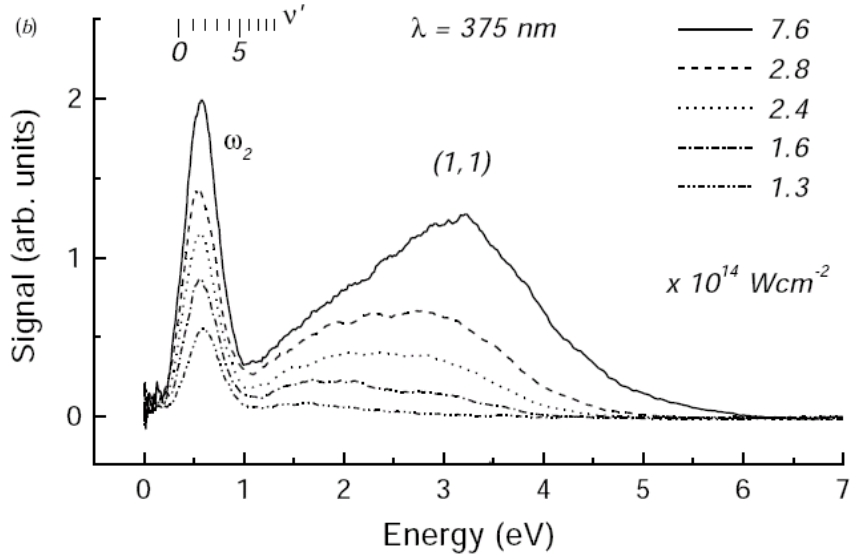

Abbildung 6.13: Spektrum der kinetischen Energie von Wasserstoffionen nach der Dissoziation durch einen 85fs-Laserpuls bei 375nm. Entnommen aus Quelle [23].

2.6 eV verschiebt. Im Vergleich mit den Spektren für 375nm aus [23] (Abb. 6.13) ist kein Prozess mit einer Ein-Photonen-Absorption bei 0.6 eV nachweisbar, dafür ist in den Ionenspektren der Peak bei 1.3 eV nicht zu finden. Die genaue Ursache für diese Fragmentenergien konnte noch nicht geklärt werden, allerdings bieten die Potentialkurven des H_2-Moleküls (z.B. aus [77]) einen möglichen Erklärungsansatz für diesen Anteil des Spektrums. Das H_2^+-Ion kann in ein neutrales H-Atom im Grundzustand und ein angeregtes Atom in einem Rydberg-Zustand dissoziieren, falls ein Übergang auf eines dieser Potentiale stattfindet. Ionische Fragmente entstehen dabei nicht, die angeregten H-Atome haben jedoch genügend Energie, um nachgewiesen zu werden, und im Fall des 2s-Zustands auch eine ausreichende Lebensdauer. Ein solcher Übergang ist beim Wasserstoffion H_2^+ möglich, wenn es sich im Grundzustand $X^2\Sigma_g^+$ befindet. Durch Rekombination mit einem freien Elektron geht das Molekülion in den Zustand $H_2^{**\,1}\Sigma_g^+$ des neutralen doppelt angeregten Wasserstoffmoleküls über. Dieser wiederum kreuzt die Rydbergpotentialkurven des H_2^+-Ions, so dass das Molekül über einen dieser Zustände dissoziieren kann. Der Prozess wird daher auch *Dissoziative Rekombination (DR)*[78] genannt:

$$e + H_2^+ \;\rightarrow\; H_2^R \;\rightarrow\; H_2^{**\,1}\Sigma_g^+ \;\rightarrow\; H(1s) + H^*(nl) \tag{6.11}$$

Ein Wiedereinfangprozess wie beim FTI-Modell liegt bei dieser Form der Dissoziation nicht unbedingt vor. Die Fragmente dieses Kanals, ein neutrales und ein angeregtes Atom,

werden in Ionenspektren nicht zu sehen sein.
Der FTI-Prozess ist also auch bei Wechselwirkung von Wasserstoffmolekülen mit einem starken Laserpuls nachweisbar. Durch Vergleich mit Energiespektren von Wasserstoffionen werden als Zerfallsprozesse Bond-Softening und Coulombexplosion identifiziert. Im folgenden Abschnitt wird das Stickstoffmolekül untersucht, welches über wesentlich mehr mögliche Zerfallskanäle bei der Coulombexplosion verfügt.

6.3 Dissoziation von Stickstoffmolekülen in starken Laserfeldern

Die Experimente zum FTI-Prozess an Wasserstoffmolekülen haben gezeigt, dass dieser in Kombination mit verschiedenen Dissoziationsprozessen auftritt. Im folgenden Abschnitt wird das wesentlich schwerere Stickstoffmolekül N_2 auf neutrale angeregte Fragmente hin untersucht, die bei einer Dissoziation durch einen intensiven Laserpuls entstehen können. Da das N_2-Molekül mehr als zwei Elektronen besitzt, sind bei der Coulombexplosion auch andere Zerfallskanäle als (1,1) möglich. Die Energiespektren der Ionenfragmente sind bekannt und von mehreren Gruppen [24, 79, 25] untersucht worden, sie zeigen vor allem Coulombexplosionskanäle von sowohl einfach als auch mehrfach ionisierten Stickstoffatomen in symmetrischen und asymmetrischen Verhältnissen. Ein einfaches Modell der Coulombexplosion wie bei Wasserstoff erklärt die Energiespektren jedoch nicht mehr, die Molekülpotentiale beeinflussen nun die kinetischen Fragmentenergien.

6.3.1 Coulombexplosion nach Enhanced Ionization

Der Prozess, der zur Coulombexplosion eines zweiatomigen Moleküls führt, läuft nach [80, 22] folgendermaßen ab: Das Molekül wird durch den Laserpuls (Feld F) während der steigenden Intensitätsflanke einfach ionisiert.

$$U = -\frac{Q/2}{|x + R/2|} - \frac{Q/2}{|x - R/2|} - Fx \tag{6.12}$$

Das verbleibende Valenzelektron des zweiten Atoms befindet sich dann in einem Doppelcoulombpotential 6.12 der beiden Kerne (Abb. 6.14 links), die nun beginnen sich voneinander zu entfernen: einerseits „sieht“ das Ion jetzt nur noch ein neutrales Atom und andererseits ist das Molekülion polarisierbar und wird vom Laserfeld auseinandergezogen. Dadurch wächst die Barriere im Potential zwischen den Kernen, bis bei einem kritischen Kernabstand R_c die Höhe der Barriere das Energieniveau des Elektrons erreicht (Abb. 6.14 Mitte). Dieses ist nun an einen Kern gebunden (bei adiabatischer Betrachtung ist dies der energetisch tiefer liegende), und die Intensitätsschwelle zur Ionisation steigt wieder an. Beim Abstand R_c ist es am wahrscheinlichsten, das Molekülion durch einen Tunnelprozess oder durch *Over-The-Barrier ionization (OTB)* weiter zu ionisieren; im Fall von Wasserstoff liegen dann nur noch die positiv geladenen Ionen vor, die sich im Coulombfeld mit der Energie 6.1 und $R = R_c$ abstoßen. Bei schwereren Ionen wie Stickstoff mit mehr Elektronen gibt es allerdings nicht nur den Zerfallskanal (Q_1, Q_2) = (1,1), sondern auch solche mit höheren Ladungsstufen, die, wie *Posthumus et al.*[66, 80] u.a. bei Messungen an Jod herausfanden, auch zur Coulombexplosion bei ungefähr demselben Abstand R_c = 10 a.u. führen. Dieser Prozess wird *enhanced ionization*[74] genannt; die durch das

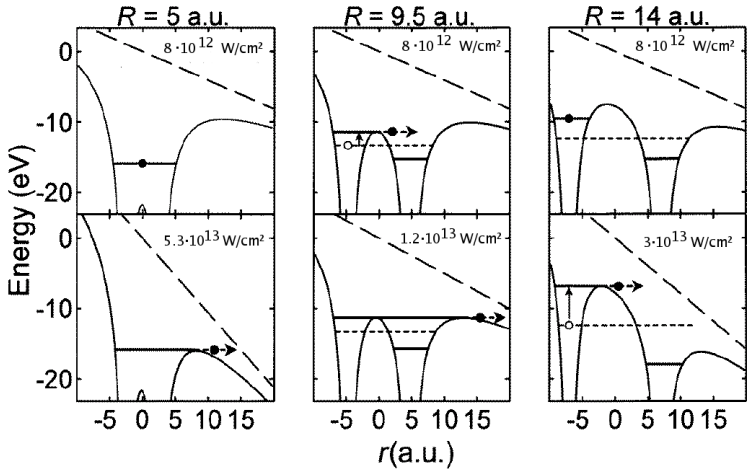

Abbildung 6.14: Doppeltes Coulombpotential von I_2^+ bei verschiedenen Kernabständen in Laserfeldern mit verschiedenen Intensitäten zur Verdeutlichung der *enhanced ionization* und des kritischen Abstands R_c. (Entnommen und angepasst aus: J.H. Posthumus et al., *Field-ionization, Coulomb explosion of diatomic molecules in intense laser fields*[80])

Auseinanderdriften der Atomkerne entstandene Barriere sorgt für eine Lokalisierung des Elektrons bei einem Ionenrumpf. Das Laserfeld verursacht dabei eine Starkverschiebung um $\Delta E = -\frac{1}{2}R \cdot F$ während der einen Hälfte der Laserperiode. Wechselt das elektrische Feld F das Vorzeichen, wird das Elektron energetisch um den Betrag ΔE nach oben verschoben und kann bei der nächsten passenden Laserperiode durch OTB-Ionisation entfernt werden. Quantenmechanisch betrachtet wird der bindende Molekülzustand bei der *Enhanced Ionization* bei bestimmten Kernabständen durch das Laserfeld stark an den antibindenden Zustand gekoppelt, der dann durch Coulombexplosion zerfällt.
Aufbauend auf diesen Vorüberlegungen ist bei Messungen an Stickstoff also ein komplexeres Energiespektrum der Fragmente zu erwarten.

6.3.2 Zerfallskanäle mit angeregten Stickstoffatomen

Die Messungen zur Stickstoffdissoziation wurden mit derselben Apparatur gemacht, die auch bei den Wasserstoffmessungen zum Einsatz kam. Als Anregungslaser wurden ausschließlich das kHz-System und das 700Hz-System von *Spectra Physics* verwendet, da die Zählrate von neutralen Stickstofffragmenten bei gleicher Laserintensität um ein bis zwei Größenordnungen unter der Rate bei den Wasserstoffexperimenten lag. Umso wichtiger ist nun auch das Entfernen der geladenen Fragmente aus dem Gasstrahl. Die Feldstäbe erwiesen sich bei den Messreihen mit variabler Feldstärke als die geeignete Elektrodenkonfiguration, mit den Plattenelektroden war es nur bei bestimmten Spannungen

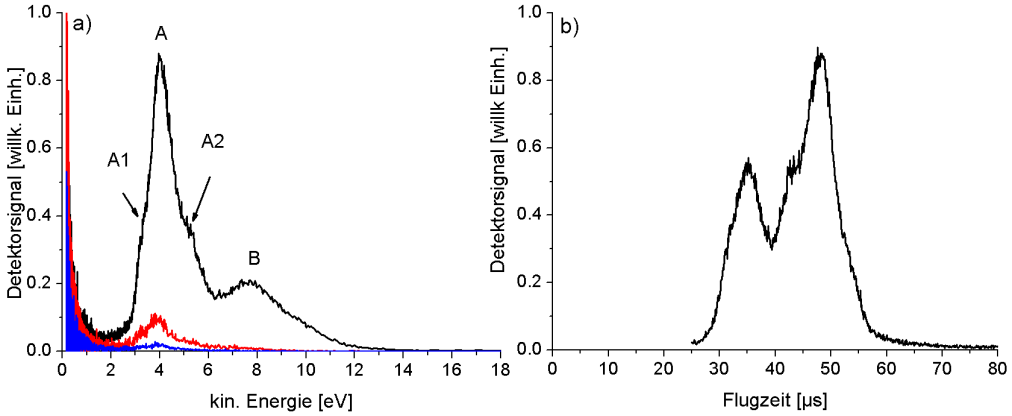

Abbildung 6.15: Energie- und Flugzeitspektren angeregter neutraler N_2-Fragmente. (a): Spektrum der kinetischen Energie der N_2-Fragmente bei verschiedenen Laserintensitäten, (-): $5.6 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$, (-): $2.3 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$, (-): $1.6 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$. (b) Flugzeitspektrum zum Energiespektrum in a) bei $I = 5.6 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$. Das Signal unter 20μs Flugzeit enthält spannungsabhängige Ionenrestsignale und ist daher ausgeblendet.

(40 V bis 60 V Spannungsdifferenz um die Wechselwirkungszone) möglich, ein Spektrum ohne geladene Partikel aufzuzeichnen. Aufgrund der niedrigen Ausbeute und des damit verbundenen schlechten Signal/Rauschverhältnisses des Detektorsignals würden auch kleine Ionenstrukturen im Flugzeitspektrum bei der Auswertung zu falschen Zuordnungen der Dissoziationsprozesse führen. Abbildung 6.15 zeigt das Energiespektrum und das Flugzeitspektrum neutraler angeregter Stickstoffatome. Die Gasstrahlgeschwindigkeit von 450 m/s für Stickstoff bei 300K ist im Energiespektrum bereits herausgerechnet worden. In 6.15a erkennt man zunächst den starken Signalabfall bei niedrigen Intensitäten ($I < 2 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$). Messungen unterhalb von $10^{15}\ W/cm^2$ sind mit dem hier verwendeten Aufbau daher nicht sinnvoll.
Die Daten bei der höchsten Intensität zeigen hingegen zwei deutliche Strukturen: Ein Maximum wird von neutralen angeregten Fragmenten mit 4eV (Peak A) und ein weiteres von solchen mit 7.6eV (Peak B) verursacht. Die Spannungsunabhängigkeit und damit die Identifikation als neutrale angeregte Atome wurde im Experiment durch Variation der Feldspannungen geprüft. Das niederenergetische Spektrum enthält zusätzlich noch zwei Substrukturen, A1 und A2, bei 3.2 und 4.9eV. Für eine Zuordnung zu bestimmten Zerfallskanälen werden das Ionenspektrum aus [24] sowie die tabellierten Zerfallskanäle aus [79, 25] vergleichend herangezogen. In ersterer Veröffentlichung untersuchen *C. Beylerian und C. Cornaggia* unter experimentellen Bedingungen, die mit denen in dieser Arbeit vergleichbar sind, die Coulombexplosion von Stickstoff und bestimmen

die auftretenden Kanäle. Das Ionenspektrum für N^{2+} weist Energiemaxima bei 1, 8.4 und 15 eV auf, wohingegen das Spektrum für N^+ Maxima bei 4.3 und 5 eV zeigt. Der Dissoziationsprozess, der zu zwei zweifach ionisierten Fragmenten $N_2 \rightarrow N^{2+} + N^{2+}$ mit jeweils 15eV kinetischer Energie führt, findet sich nicht im N^*-Spektrum wieder. Dies ist verständlich, da nach dem FTI-Modell ein N^{2+}-Ion zwei Elektronen einfangen müsste. Dieser Prozess ist statistisch unwahrscheinlich und wird auch wegen der geringen Gesamtausbeute an N^* nicht beobachtet. Damit fallen auch alle Dissoziationskanäle mit Ionisationsstufen größer als 4 als Beiträge zum N^*-Spektrum aus. Ebenso tritt der Prozess $N_2 \rightarrow N^{2+} + N$ nicht in Verbindung mit neutralen angeregten Stickstoffatomen auf, da die dazugehörige Fragmentenergie von 1eV nicht im Spektrum 6.15a zu finden ist.
Der Peak B steht in Verbindung mit dem Prozess $N_2 \rightarrow N^{2+} + N^+$, die kinetische Energie von 7.6eV der neutralen Fragmente lässt sich dem Kanal <1,2> (7.6eV) und <2,1> (7.7eV) (Tabelle 1) aus [79] zuordnen. In [24] wird hingegen für den gleichen Kanal eine Dissoziationsenergie von 8.4eV pro Nukleon bei einer um eine Größenordnung kleinerer Intensität gemessen. Das N^+-Ion wird nach der Coulomb-Explosion, die durch das doppeltgeladene zweite Ion zu höheren Geschwindigkeiten führt als der Prozess $N_2 \rightarrow N^+ + N^+$, durch Wiedereinfang eines Elektrons neutral und verbleibt in einem angeregten Zustand. Die Struktur A im Spektrum gehört zum Dissoziationskanal $N_2 \rightarrow N^+ + N^+$, was durch den Vergleich der erreichten kinetischen Energien um 4.3 eV mit Ionenspektren aus [24, 79, 25] bestätigt wird. Das Ionenspektrum in Abb. 3 aus [25] zeigt eine Doppelstruktur bei Energien von 3.4 bzw. 4.3 eV pro Atom. Die Werte aus [24] liegen hingegen mit 4.3 und 5eV pro Fragment über den hier ermittelten Energien der Peaks A, A1 und A2. Die Struktur um A ist mit einer einfachen Coulombexplosion nicht mehr zu erklären und die Verknüpfung des N^*-Spektrums mit den Ionenspektren nicht eindeutig. Dies liegt unter anderem daran, dass bei den hier herangezogenen Vergleichsspektren unterschiedliche Laserintensitäten verwendet und auch unterschiedliche Fragmentenergien gemessen wurden. Die kinetischen Energiebeträge hängen also stark von den eingestellten Laserparametern ab. *Alnaser et al.* geben als Ursache für die Substruktur in der Dissoziation $N_2 \rightarrow N^+ + N^+$ verschiedene mögliche Molekülzustände des N_2^{2+} an, bevor dieses zerfällt. Der Analogieschluß, dies auf die Struktur im N^*-Spektrum zu übertragen, ist aufgrund der erwähnten Parallelen bei den Dissoziationsenergien möglich. Abgesehen von der Vergleichbarkeit mit Ionenspektren zeigen die experimentellen Ergebnisse für neutrale Stickstofffragmente, dass das Entstehen von N^* nur bei Dissoziationsprozessen möglich ist, bei denen ein einfach ionisiertes Fragment entsteht.
Die zugrunde liegenden Prozesse werden auch durch eine Auswertung der Intensitätsabhängigkeit der N^*-Rate bestätigt. In Abbildung 6.16 sind neben dem Energiespektrum aus Abb.6.15a für $I_1 = 5.6{\cdot}10^{15} W/cm^2$ auch die Verhältnisse S_2 und S_3 von diesem zu den Energiespektren bei $I_2 = 2.3 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$ und $I_3 = 1.6 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$ zu I_1 eingezeichnet. Das Verhältnis zur höchsten Intensität I_1 nimmt sowohl bei S_2 als auch S_3 für das Maximum B stärker ab als für Peak A. Der Unterschied im Verhältnis zwischen den Maxima A und B beträgt eine etwa Größenordnung. Dies ist physikalisch verständlich,

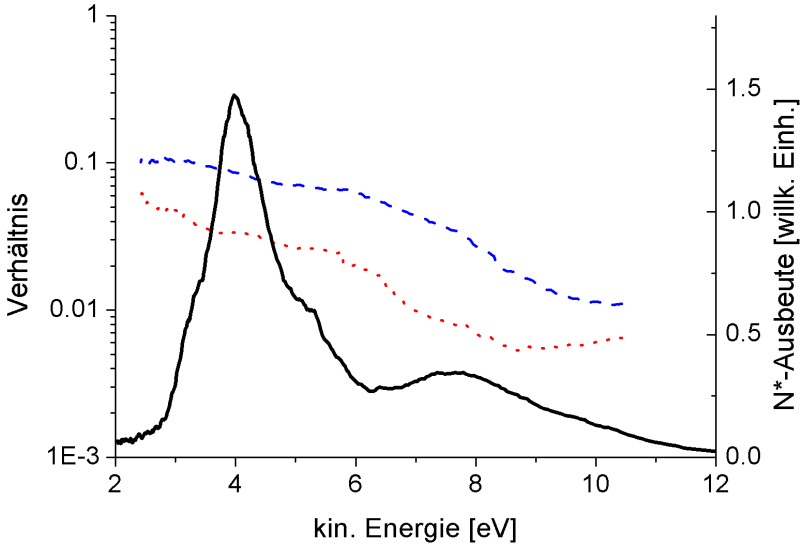

Abbildung 6.16: Verhältnis der Intensitätsabhängigkeiten von N^* zur Intensität $I_1 = 5.6 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ (–): (–): $I_2 = 2.3 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ zu I_1, (–): $I_3 = 1.6 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ zu I_1. Weitere Ausführungen siehe Text.

da für den Fragmentationsprozess zu B $N_2 \rightarrow N^{2+} + N^+$ höhere Laserintensitäten nötig sind als für den Prozess zu A. Die Intensitätsabhängigkeit ist entsprechend im Bereich von 6 bis 10 eV stärker als darunter.

Abschließend ist noch zu klären, ob das Auftreten neutraler angeregter Stickstofffragmente gemäß dem FTI-Modell und analog zu den Wasserstoffmessdaten die entsprechenden Polarisationsabhängigkeiten zeigt. Die Dissoziation des N_2-Moleküls findet wie bei H_2 entlang der Laserpolarisationsachse statt, wie in Abbildung 6.17a zu sehen ist. Hier sind die Abhängigkeiten des Polarisationswinkels (0° entspricht Polarisation parallel zum Gasstrahl) für die beiden Peaks A und B getrennt dargestellt. Während bei der Struktur A auch bei senkrechter Polarisationsachse noch neutrale Atome nachgewiesen werden, ist dies beim Signal B nicht der Fall. Auch dies entspricht dem Ergebnis für eine Messung an Stickstoffionen von *Miyazaki et al.*[81]. Bei ionischen Fragmenten lässt dieses Verhalten auf eine zunehmende Ausrichtung der Molekülachse während der Dissoziation bei wachsender Ladungszahl schließen. Zeigen also die neutralen Fragmente ebenfalls diesen Effekt, findet der Neutralisationsprozess durch FTI erst nach der Dissoziation und der Coulombexplosion statt. Weitere Bestätigung des FTI-Prozesses bei Stickstofffragmentation erhält man durch die Elliptizitätsabhängigkeit (Abb. 6.17b). Ist der Laserpuls zirkular polarisiert, ist auch bei einer Spitzenintensität von $I = 2.8 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ (zirkular) kein N^* mehr nachweisbar. Auch bei der Untersuchung der nichtsequentiellen

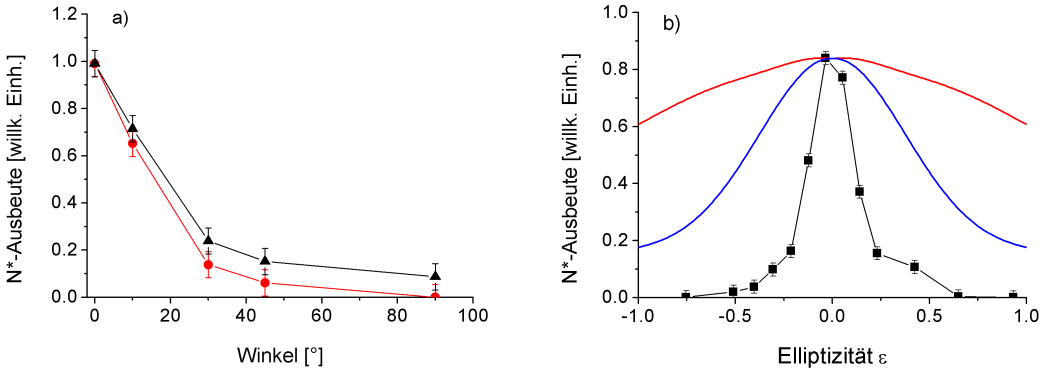

Abbildung 6.17: a) Gemessenes N^+-Signal bei Drehung der linearen Laserpolarisation für Peak A (▲) und Peak B (●).
b) Elliptizitätsabhängigkeit der N^*-Ausbeute bei $I = 5.6 \cdot 10^{15}\, W/cm^2$ bei $\epsilon = 0$ (lin. Polarisation). (−) und (−) sind die nach Gl. 2.18 berechneten Ionisationsraten für N_2^+ (E_{ion} =15.58 eV) und N_2^{2+} (E_{ion} =27.12 eV)

Doppelionisation von N_2 wurde bei zirkularer Laserpolarisation der mit NSDI verbundene Rückstreuprozess nicht nachgewiesen [82], da bei den Ionisationsraten die dafür typische Kniestruktur fehlt.
Die Ergebnisse der Untersuchungen zur Neutralenbildung bei Moleküldissoziation zeigen also, dass der FTI-Prozess auch bei Molekülen auftritt. Sowohl Wasserstoff- als auch Stickstoffatome können nach einem Dissoziationsprozess ein Elektron wieder in einen angeregten Zustand einfangen. Voraussetzung dafür ist ein einfach ionisiertes Fragment, da die Einfangwahrscheinlichkeit von mehr als einem Elektron zu gering ist um nachweisbar zu sein. Der FTI-Prozess als solcher ist von der Fragmentation unabhängig, diese findet statt, während das Elektron vom Laserfeld beschleunigt und wieder zurückgetrieben wird. Dementsprechend sind die Dissoziationsprozesse im Energiespektrum der neutralen Fragmente mit Hilfe eines Ionenspektrums identifizierbar, da sich die kinetischen Energien allein aus der Dissoziation ergeben. Bei Wasserstoff treten dabei Bond-Softening und Coulomb-Explosion als Prozesse auf. Stickstoff zeigt symmetrische und asymmetrische Coulombexplosion aus verschiedenen N_2^{2+}-Zuständen im Spektrum der neutralen angeregten Fragmente. Die Polarisationsabhängigkeiten des treibenden Laserfeldes bestätigen schließlich das FTI-Modell.

7 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde die Entstehung angeregter Zustände in Atomen und Molekülen durch Wechselwirkung mit einem kurzen intensiven Laserpuls (Intensitäten von $10^{14} W/cm^2$ bis $10^{16} W/cm^2$) untersucht. Dabei wurde erstmals der Prozess der *Frustrated Tunneling Ionization (FTI)* beschrieben, der sich am Rückstreumodell orientiert und dieses ergänzt. Bei diesem Prozess wird ein aus dem Atom im Laserfeld getunneltes Elektron nach dem Laserpuls wieder vom Ionenrumpf in einen angeregten Zustand eingefangen, falls die kinetische Energie des Elektrons nicht ausreicht um dem Coulombpotential zu entkommen. An verschiedenen Edelgasen wurde der FTI-Prozess im Experiment nachgewiesen und unter anderem die Intensitäts- und Polarisationsabhängigkeiten untersucht. Bei neutralen Helium- und Neonatomen konnte erstmalig auch die Beschleunigung durch einen kurzen Laserpuls nachgewiesen werden, wobei als treibende Kraft die ponderomotorische Kraft auftritt. Die erreichten Beschleunigungen liegen bei 10^{14}-facher Erdbeschleunigung. Die Messungen von angeregten Molekülfragmenten zeigen neue, bislang nicht untersuchte Dissoziationskanäle, bei denen nach einer Coulombexplosion oder einer Dissoziation durch Bond-Softening ein Fragment in einem angeregten Zustand zurückbleibt. Auch hier konnte als Ursache der FTI-Prozess identifiziert werden.
Die Bildung angeregter Zustände erfolgt durch einen Wiedereinfang des getunnelten Elektrons, der als *Frustrated Tunneling Ionization (FTI)* bezeichnet wird. Der FTI-Prozess tritt gleichzeitig mit bereits bekannten Rückstreuprozessen, NSDI, ATI und HHG auf und ergänzt das zugrundeliegende Modell. An Edelgasen, insbesondere Helium und Argon wurde der FTI-Prozess nachgewiesen und quantitativ untersucht, wobei durch die Anregungsenergie der Atome diese direkt mit einem MCP-Detektor nachgewiesen werden können. Nach dem Laserpuls liegen Atome zu etwa 10% der Ionenausbeute in einem Rydbergzustand oder einem metastabilen Zustand vor. Durch Lebensdauereffekte, die zum Zerfall der Rydbergzustände führen, ändert sich die Zustandsbesetzung und die Gesamtzahl der angeregten Atome während der Flugzeit. Eine Messung der Elliptizitätsabhängigkeit der Neutralenausbeute zeigt eine Dynamik, die der nichtsequentiellen Mehrfachionisation in zirkular polarisierten Laserfeldern entspricht und bestätigt damit den Wiedereinfangprozess im FTI-Modell.
Zum grundlegenden Verständnis der ablaufenden Dynamik wurde das FTI-Modell als semiklassisches Modell mittels newtonscher Bewegungsgleichungen auf Basis des Tunnelmodells und des Rückstreumodells von *Corkum et al.* [10] entwickelt. Es hat als Ausgangspunkt ein Elektron, das mit einer Tunnelwahrscheinlichkeit das Coulombpotential im Laserfeld verlassen hat und nun bei einem bestimmten Querimpuls und zu

einer bestimmten Laserphase vom Feld beschleunigt wird. Eine Auswertung der kinetischen Energie aus den Lösungen der Bewegungsgleichung ergibt, dass niedrigliegende Rydbergzustände um n=8 besetzt werden. Die Verteilung der Zustände ist unabhängig von der Laserintensität, nur die Gesamtausbeute nimmt zu hohen Intensitäten hin ab. Bei einer Intensität von $10^{15}\ W/cm^2$ ergeben etwa 10% der berechneten Trajektorien einen angeregten Zustand. Eine systematische Untersuchung der Startparameter in einer 2D-Karte ergibt Zonen von Parametersätzen, bei denen ein Wiedereinfang möglich ist. Diese Zonen werden bei kürzeren Wellenlängen größer. Das Elektron wird demnach nur bei bestimmten Anfangswerten vom Ion eingefangen, je höher die Wahrscheinlichkeit eines Impulsübertrags auf das Elektron während des Beschleunigungsprozesses ist, desto größer wird der Querimpuls und der Einfang ist nicht mehr möglich.
Zur Überprüfung des semiklassischen Modells wurden die Ergebnisse mit quantenmechanischen *Configuration-Interaction (CI)*-Rechnungen verglichen; einmal mit einer *Single-Active-Electron (SAE)*-Rechnung und einmal mit einer Zwei-Elektron-CI-Kalkulation. Die Verteilung der Zustandsbesetzung des FTI-Modells wird in den quantenmechanischen Simulationen sehr gut reproduziert. Ein Vergleich der Daten aus den Experimenten an Helium mit verschiedenen theoretischen Ansätzen zeigt ebenfalls sehr gute Übereinstimmungen. Mit einer Messung der Besetzung von Rydbergzuständen durch Feldionisation der angeregten Atome wurde auch eine Übereinstimmung der theoretischen n-Verteilung mit der gemessenen Feldspannungsabhängigkeit in einem Teilbereich der Verteilung nachgewiesen.
Die angeregten Atome ergeben nicht nur ein Flugzeitspektrum, das die Geschwindigkeitsverteilung im Gasstrahl zeigt, sondern auch eine Ortsverteilung auf dem Detektor, die die Intensitätsverteilung im Fokus des Anregungslasers wiedergibt. Es wurde ein Modell aus der Intensitätsverteilung in einem gaußschen Laserstrahl und der ADK-Formel [6] entwickelt, um die Ausbeuten an angeregten neutralen Argonatomen in den einzelnen Intensitätsbereichen berechnen zu können. Die dazu gelösten Ratengleichungen ergeben übereinstimmend mit dem Experiment eine Ausbeutenverteilung an Ar* entlang der Laserstrahlachse. Insbesondere wurde das ausgeprägte Minimum an Atomen im Fokus reproduziert, welches auf die Wechselwirkungsvolumengröße einerseits und eine Konkurrenzionisation andererseits zurückgeführt werden kann. Die so erstellten Profile entsprechen prinzipiell denen einer *Intensity Selective Scanning (ISS)*-Messung [52], der Unterschied liegt jedoch darin, dass hier das 2D-Abbild des Laserstrahls mit einer einzigen Messung erfasst werden kann.
Die ortsaufgelösten Verteilungen der angeregten Helium- und Neonatome zeigen einen weiteren, bisher nicht untersuchten Effekt, der zu einer starken Ablenkung der Atome senkrecht zum Laserstrahl führt. Eine Abschätzung der Dipolkraft über die Polarisierbarkeit der Atome ergab keine zufriedenstellende Übereinstimmung mit den Messdaten, die Beschleunigung wurde daher der ponderomotorischen Kraft zugeschrieben, die auf das getunnelte Elektron wirkt. Obwohl bei Intensitäten oberhalb der Sättigungsintensität (Helium: $1.5 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$) im Allgemeinen keine neutralen Atome mehr zu erwarten

sind, wurden hier neutrale angeregte Heliumatome nachgewiesen, die mit $10^{14}\ g$ beschleunigt wurden. Diese Beschleunigung ist um mehrere Größenordnungen höher als die Beschleunigung, die durch eine optische Dipolkraft in anderen Experimenten [12, 13] erreicht wurde. Da das Elektron nach der Laserwechselwirkung an den Kern gebunden ist, führt das gesamte Atom eine Schwerpunktsbewegung durch. Je länger der Laserpuls bei konstanter Intensität ist, desto größer ist auch die gemessene Maximalgeschwindigkeit. Sowohl für Helium als auch für Neon, welches die fünffache Masse von Helium hat, wurden beschleunigte Atome gemäß den aus einer Bewegungsgleichung berechneten Werten nachgewiesen.
Der FTI-Prozess tritt auch bei der Wechselwirkung von Molekülen mit starken Laserfeldern auf. Bei Messungen an Wasserstoff und Stickstoff ist dieser Prozess als ein Teil von einigen bisher nicht untersuchten Dissoziationskanälen nachgewiesen worden. Nach der Dissoziation eines Wasserstoffmoleküls durch Coulombexplosion oder Bond-Softening kann ein Elektron durch den Laserpuls zu einem ionisierten Fragment zurückgetrieben und eingefangen werden. Die Ergebnisse zeigen in beiden Fällen ein Spektrum der kinetischen Energie von neutralen Molekülfragmenten, die aus unterschiedlichen Dissoziationsprozessen stammen. Da der Wiedereinfang des Elektrons aus der Tunnelionisation erst nach allen stattfindenden Dissoziationsprozessen geschieht, können die Energiespektren der neutralen Fragmente mithilfe der bereits bekannten Ionenspektren des gleichen Moleküls erklärt werden. Eine Simulation mit einer an H_2^+ angepassten Heliummodellrechnung zeigt, dass die Coulombexplosion bei den in dieser Arbeit vorgestellten Messreihen hauptsächlich nach einer direkten sequentiellen Doppelionisation bei geringen Kernabständen ($R \approx 2.5$-3.5 a.u.) stattfindet.
Bei der Dissoziation von Stickstoffmolekülen wurde festgestellt, dass für einen FTI-Prozess nach einer Coulombexplosion von mehrfach ionisiertem Stickstoff mindestens ein einfach geladenes Fragment notwendig ist. Neutrale N-Atome, die aus Zerfallsprozessen mit höheren Ladungsstufen hätten entstehen können, wurden nicht nachgewiesen. Der Wirkungsquerschnitt für einen zweifachen Wiedereinfang von Elektronen in einen angeregten Zustand ist für einen Nachweis mit dem hier verwendeten Versuchsaufbau zu gering.
Der FTI-Prozess ist also ein mit den bekannten Rückstreuprozessen verbundener Effekt, der bei Wechselwirkung von Atomen und auch Molekülen mit intensiven Laserpulsen stattfindet. Er ergänzt das Rückstreumodell von P. Corkum und tritt allgemein als Wiedereinfangprozess zusammen mit NSMI, HHG und ATI auf. Dabei ist der FTI-Prozess gegenüber HHG und NSMI mit einer Ausbeute von 10% der Ionenproduktion der dominante Prozess. Neben den durch die FTI hinzugewonnenen Erkenntnissen zur Licht-Materie-Wechselwirkung, insbesondere die Besetzung von Rydbergzuständen, bietet auch die direkte Nachweismethode mittels eines ortsauflösenden MCP-Detektors verschiedene Einsatzmöglichkeiten. Die Abbildung des Intensitätsprofils eines fokussierten Kurzpulslasers wurde in dieser Arbeit bereits beschrieben, der Effekt der Beschleunigung neutraler Edelgasatome durch die ponderomotorische Kraft kann den Nachweis des Kapitza-Dirac-

Effektes [19] an neutralen Teilchen ermöglichen. Der KD-Effekt, der analog zur Beugung von Licht am Gitter die Beugung von Materiewellen an einem optischen Gitter beschreibt, wurde 2001 an Elektronen nachgewiesen [20]. Mit einer stehenden Lichtwelle mit hinreichend großen Intensitätsgradienten könnte der KD-Effekt über die Beschleunigung der angeregten Atome nachweisbar sein. Da der Wiedereinfangprozess eines Elektrons universell auftritt, ist eine Untersuchung des Beschleunigungseffektes bei hochgeladenen Ionen ein interessanter Ansatzpunkt für die laserbasierte Teilchenbeschleunigung. Für das weitere Verständnis des FTI-Prozesses ebenfalls interessant ist die genaue Vermessung der Besetzungsverteilung der Zustandsquantenzahlen n und l nach der Anregung, die Abhängigkeit von der Pulsdauer des Laserfeldes und auch das Verhalten des Einfangs bei langen ($\lambda > 2\mu$m) und kurzen ($\lambda < 400$nm) Laserwellenlängen. Durch weiterführende Experimente, die auf die grundlegenden Ergebnisse dieser Arbeit aufbauen, können diese Fragestellungen nun untersucht und beantwortet werden.

8 Veröffentlichungen im Rahmen dieser Arbeit

Veröffentlichungen in Zeitschriften und Monographien

- T. Nubbemeyer, K. Gorling, A. Saenz, U. Eichmann and W. Sandner, *Strong field tunneling without ionization*, PRL **101**, 233001 (2008)
- B. Manschwetus, T. Nubbemeyer, K. Gorling, G. Steinmeyer, U. Eichmann, H. Rottke and W. Sandner, *Strong laser field fragmentation of H_2: Coulomb explosion without double ionization*, PRL **102**, 113002 (2009)
- T. Nubbemeyer, U. Eichmann and W. Sandner, *Excited neutral atomic fragments in strong field dissociation of N_2 molecules*, J. Phys. B **42**, 134010 (2009)
- U. Eichmann, T. Nubbemeyer, H. Rottke and W. Sandner, *Acceleration of neutral atoms in strong short-pulse laser fields*, Nature **461**, 1261-1264 (2009)

Danksagung

Zunächst möchte ich mich bei Herrn Professor Sandner für die Betreuung meiner Arbeit bedanken sowie für die Möglichkeit, diese Arbeit als Doktorand am MBI anfertigen zu können. Desweiteren danke ich Dr. U. Eichmann, ohne dessen Engagement und Unterstützung ich die Dissertation nicht hätte verwirklichen können. Mein Dank gilt auch allen anderen Doktoranden und Diplomanden, die mir während der Zeit als Doktorand immer hilfs- und diskussionsbereit zur Seite standen. Außerdem danke ich allen Technikern am MBI für die Hilfe sowie den Sekretärinnen für die organisatorische Unterstützung.
Nicht zuletzt bedanke ich mich bei meiner ganzen Familie, besonders bei meinen Geschwistern und vor allem bei meinem Vater für die Unterstützung und das Verständnis, welches sie mir während meiner Doktorandenzeit entgegengebracht haben.

Abbildungsverzeichnis

2.1 Ein- und Multiphotonenionisation 7
2.2 ATI-Photoelektronenspektrum 8
2.3 Tunnelionisation durch effektives Potential 9
2.4 Ionisationsraten von Helium 12
2.5 Rückstreumodells nach P.Corkum 13
2.6 Elektronentrajektorien während einer Laserperiode 14

3.1 Aufbauskizze der Vakuumapparatur 18
3.2 Spannungskonfigurationen für den MCP-Detektor 19
3.3 Elektrodenanordnungen 20
3.4 Datenerfassung 22
3.5 Strahlabschwächer 23
3.6 Gauss-Strahl im Fokus 25
3.7 *knife-edge*-Methode 27
3.8 Ortsaufgelöste Verteilung angeregter neutraler Edelgasatome 28
3.9 Abbildungsgeometrie 29
3.10 Flugzeitspektren von He, Ar und Kr 31
3.11 Flugzeitspektren von Helium 31
3.12 Flugzeitspektrum eines effusiven Strahls 33
3.13 Besetzungszahlen von Wasserstoffzuständen 36
3.14 Feldabhängigkeit von Ar*, Kr* und Xe* 38
3.15 Abhängigkeit Ar* vom elektr. Feld (Feldpuls oder statisch) 39
3.16 Vergleich: Gemessene Produktion von Ar* und Ar^+ mit [50] und ADK-Raten 41
3.17 Elliptizitätsabhängigkeit angeregter Argonatome 42
3.18 Termschema von Argon 43
3.19 Ortsaufgelöste Verteilung angeregter Argonatome (versch. Intensitäten) . . 44
3.20 Ausbeute angeregter Argonatome entlang der Laserstrahlachse 45
3.21 Intensitätsprofil eines fokussierten Gaußstrahls ($w_0 = 16\mu m, \lambda = 800nm, z_R = 1mm$) nach Formel 3.22. Die Konturbeschriftungen geben die Intensität der Konturlinie bezüglich der Spitzenintensität I_{peak} an. . . 46
3.22 Skizze des Ratengleichungssystems für Ar^* 48
3.23 Ausbeute angeregter Argonatome mit Simulationsdaten 50
3.24 Gemessene Ar^*-Ausbeuten und Ergebnis der Ratengleichung für 2D-Profile 50

4.1 Elliptizitätsabhängigkeit von He^+ und He^* . . . 53
4.2 Intensitätsabhängigkeit von He^+ und He^* . . . 54
4.3 Termschema von Helium . . . 56
4.4 Berechnete Elektronentrajektorien . . . 60
4.5 Ausbeute angeregter Atome (intensitätsabh.) . . . 61
4.6 2D-Verteilung eingefangener Elektronen (Pulsdauer variiert) . . . 62
4.7 2D-Verteilung eingefangener Elektronen (Einfluss eines Soft-Coulomb-Potentials . . . 63
4.8 Besetzungsverteilung der n-Quantenzahl . . . 63
4.9 2D-Verteilung eingefangener Elektronen (Wellenlänge variiert) . . . 64
4.10 n-Verteilung in Helium . . . 67
4.11 Vergleich zwischen qm. Rechnung und semiklassischem Modell: Gesamtausbeute . . . 68
4.12 n- und l-Verteilung in Helium . . . 68
4.13 Vergleich: Gemessene Ausbeuten He^+ und He^* mit MC-Simulation . . . 69
4.14 Feldabhängigkeit von He^*-Ausbeute . . . 71
4.15 Feldabhängigkeit von He^*-Ausbeute (versch. Intensitäten) . . . 71
4.16 He*-Ausbeute bei statischem und gepulstem Feld . . . 73
4.17 Vergleich: Spannungsabh. von He^*-Ausbeute mit Modell . . . 73

5.1 Ortsverteilung angeregter Heliumatome nach Beschleunigungsprozess . . . 78
5.2 Maximalgeschwindigkeiten angeregter Heliumatome für verschiedene Pulsdauern . . . 79
5.3 Simulierte Elektronentrajektorie und Geschwindigkeit eines beschleunigten Heliumatoms . . . 82
5.4 Anzahl gebundener Zustände bei verschiedenen Intensitätsgradienten . . . 84
5.5 Intensitätsabhängigkeit der Maximalgeschwindigkeiten . . . 85
5.6 Maximalgeschwindigkeiten laserbeschleunigter Heliumatome (gemittelt) . 87
5.7 Vergleich: Maximalgeschwindigkeiten von Neon und Helium . . . 87
5.8 Maximalgeschwindigkeiten laserbeschleunigter angeregter Neonatome . . . 88
5.9 Vergleich: Gemessene Maximalgeschwindigkeiten bei Spitzenintensität und berechnete Werte . . . 88
5.10 Polarisationsabhängigkeit der beschleunigten Atome . . . 89
5.11 Druckabhängigkeit der beschleunigten Atome . . . 90
5.12 Abbildung der Beschleunigung von Helium mit Gitter . . . 91

6.1 Potentialkurven vom Wasserstoffmolekül . . . 93
6.2 Dissoziationskanäle beim Wasserstoffmolekül . . . 94
6.3 Skizze der Apparatur mit zwei Detektoren . . . 96
6.4 Flugzeit- und Energiespektrum von neutralen Wasserstofffragmenten . . . 96
6.5 Polarisationsabhängigkeit neutraler angeregter H_2-Molekülfragmente . . . 97

6.6 Spektrum kinetischer Energien von Wasserstoffionen 99
6.7 Ergebnisse korrelierter H^+-H^*-Messung 99
6.8 Intensitätsabhängigkeit neutraler H_2-Fragmente 100
6.9 Vergleich der beiden Flugstrecken für H*-Atome 101
6.10 Berechnete Trajektorie zur Wasserstoffdissoziation 105
6.11 Vergleich von berechneten mit gemessenen Dissoziationsenergien 105
6.12 Energiespektren der Wasserstoffdissoziation bei $\lambda = 400$nm 107
6.13 Spektrum kinetischer Energien von Wasserstoffionen bei 375nm 108
6.14 Doppeltes Coulombpotential von I_2^+ 111
6.15 Energie- und Flugzeitspektren angeregter neutraler N_2-Fragmente 112
6.16 Intensitätsabhängigkeit von N^* 114
6.17 Polarisationsabhängigkeit neutraler angeregter Stickstofffragmente 115

Literaturverzeichnis

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

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

[3] X. Li, A. L'Huillier, M. Ferray, L. A. Lompre, and G. Mainfray, Phys. Rev. A **39**, 5751 (1989).

[4] A. l'Huillier and P. Balcou, Phys. Rev. Lett. **70**, 774 (1993).

[5] L. Keldysh, Sov. Phys. JETP **20(5)**, 1307 (1965).

[6] N. Delone, M.V.Ammosov and V. Krainov, Sov. Phys. JETP **64**, 1191 (1986).

[7] A. Perelomov, V. Popov and M. Terentev, Sov. Phys. JETP **23**, 924 (1966).

[8] D. Fittinghoff, P. Bolton, B. Chang and K. Kulander, Phys. Rev. Lett. **69**, 2642 (1992).

[9] B. Walker, B. Sheehy and L. DiMauro, Phys. Rev. Lett. **73**, 1227 (1994).

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

[11] R. Grimm, M. Weidemüller and Y. Ovchinnikov, Adv. At. Mol. Phys. **42**, 95 (2000).

[12] R. Fulton, A. Bishop and P. Barker, Phys. Rev. Lett. **93**, 243004 (2004).

[13] R. Fulton, A. Bishop and P. Barker, Phys. Rev. A **71**, 043404 (2005).

[14] H. Boot and R.-S. Harvie, Nature **180**, 1187 (1957).

[15] H. Dehmelt, Adv. At. Mol. Phys. **3**, 53 (1967).

[16] T. Tajima and J. Dawson, Phys. Rev. Lett. **43**, 267 (1979).

[17] C. Geddes, Nature **431**, 538 (2004).

[18] E. Esarey, C. B. Schroeder and W. P. Leemans, Review of Modern Physics **81**, 1229 (2009).

[19] P. Kapitza and P. Dirac, Proc. Camb. Philos. Soc. **29**, 297 (1933).

[20] D. Freimund, K. Aflatooni and H. Batelaan, Nature **413**, 142 (2001).

[21] C. Cornaggia and P. Hering, Phys. Rev. A **62**, 023403 (2000).

[22] J.H.Posthumus, Rep. Prog. Phys. **67**, 623 (2004).

[23] M. Thompson, M. Thomas and P. T. el al., J. Phys. B **30**, 5755 (1997).

[24] C. Beylerian and C. Cornaggia, J. Phys. B **37**, L259 (2004).

[25] A. Alnaser, S. Voss and X.-M. T. et al., Phys. Rev. Lett. **93**, 113003 (2004).

[26] F. Fabre, G. Petite, P. Agostini and M. Clement, J. Phys. B **15**, 1353 (1982).

[27] G. Petite, F. Fabre, P. Agostini, M. Crance and M. Aymar, Phys Rev. A **29**, 2677 (1984).

[28] G. Voronov and N. Delone, JETP Letters **1**, 66 (1965).

[29] R. Shakeshaft, Z. Phys. D **8**, 47 (1987).

[30] G. Petite, P.Agostini and H. Muller, J. Phys. B. **21**, 4097 (1988).

[31] H. Reiss, Phys. Rev A **75**, 031404 (2007).

[32] M. de Boer and H. Muller, Phys. Rev. Lett. **68**, 2747 (1992).

[33] R. Jones, D. Schumacher and P. Bucksbaum, Phys. Rev. A **47**, R49 (1993).

[34] E. Wells, I.Ben-Itzhak and R. Jones, Phys. Rev. Lett. **93**, 023001 (2004).

[35] H. Hotop, Exp. Meth. in the Phys. Sci. **29B**, 195 (1996).

[36] F. Penent, P. Lablanquie and R. H. et al., Phys. Rev. Lett. **86**, 2758 (2001).

[37] A. Browaeys, A. Robert, O. Sirjean, J. Poupard, S. Nowak, D. Boiron, C. I. Westbrook, and A. Aspect, Phys. Rev. A **64**, 034703 (2001).

[38] R. Schumann, *Laserkühlung und Speicherung metastabiler Heliumatome in inhomogenen elektrischen Feldern*, Dissertation, Technische Universität Berlin, 2004.

[39] C. Schubert, *Aufbau eines ortsempfindlichen Detektors zum Nachweis metastabiler He-Atome*, Diplomarbeit, Technische Universität Berlin, 1998.

[40] W. Wiley and I. McLaren, Rev. of Sci. Instr. **26**, 1150 (1955).

[41] R. Schneider, *Aufbau eines Laserverstärkersystems und Anwendung bei Photoionisationsexperimenten*, Dissertation, Technische Universität Berlin, 2003.

[42] D. Strickland and G. Morou, Opt. Commun. **56**, 219 (1985).

[43] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot and G. Mourou, IEEE J. Quantum electron. **24**, 398 (1988).

[44] C. Iaconis and I. Walmsley, Opt. Lett. **23**, 792 (1998).

[45] H. Pauly, in *Atomic and Molecular Beam Methods*, edited by G. Scoles (Oxford University Press, London, 1988).

[46] J. Anderson and J. Fenn, Phys. of Fluids **8**, 780 (1965).

[47] H. A. Bethe and E. E. Salpeter, *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms* (Plenum Publishing Corporation, New York, 1977).

[48] T. Gallagher, *Rydberg Atoms* (Cambridge University Press, Cambridge, 1994).

[49] H. Muller, Phys. Rev. Lett. **83**, 3158 (1999).

[50] S. Larochelle, A. Talebpour and S. Chin, J. Phys. B **31**, 1201 (1998).

[51] S. Augst, D. Meyerhofer, D. Strickland and S. Chin, J. Opt. Soc. Am. B **8**, 858 (1991).

[52] A. El-Zein, P. McKenna and W. B. et al., Physica Scripta **T92**, 119 (2001).

[53] W.A.Bryan, S. Stebbings and J. M. et al., Nature **2**, 379 (2006).

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

[55] T. Nubbemeyer, K. Gorling, A. Saenz, U. Eichmann and W. Sandner, Phys. Rev. Lett. **101**, 233001 (2008).

[56] G. Drake and D. Morton, Astrophys. J. Suppl. Series **170**, 215 (2007).

[57] G. Drake and D. Morton, Astrophys. J. Suppl. Series **170**, 251 (2006).

[58] Z. Zhao-Yan and Y. Jian-Min, Chinese Physics **16**, 675 (2007).

[59] N. Delone and V. Krainov, J. Opt. Soc. Am. B **8**, 1207 (1991).

[60] N. Shvetsov, S. Goreslavski, S. Popruzhenko and W. Becker, Laser Phys. Lett. **1**, 1 (2009).

[61] M. Awasthi, Y. Vanne and A. Saenz, J. Phys. B **38**, 3973 (2005).

[62] N. Rohringer, A. Gordon and R. Santra, Phys. Rev. A **74**, 043420 (2006).

[63] A. Ashkin, J. Dziedzic, J. Bjorkholm and S. Chu, Optical Letters **11**, 288 (1986).

[64] B. Quesnel and P. Mora, Phys. Rev. E **58**, 3719 (1998).

[65] K. Codling, L. Frasinski and P. Hatherly, J. Phys. B **21**, L433 (1988).

[66] J. Phostumus, L. Frasinski, A. Giles and K. Codling, J. Phys. B **28**, L349 (1995).

[67] C. Schellhammer, *Photoionisation und Photodissoziation von Wasserstoff*, Inaugural-dissertation, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg im Breisgau, 1999.

[68] P. Bucksbaum, A. Zavriyev, H. Muller and D. Schumacher, Phys. Rev. Lett. **64**, 1883 (1990).

[69] A. Bandrauk and M. Sink, J. Chem. Phys. **74**, 1110 (1981).

[70] I. Williams and P. M. et al., J. Phys. B **33**, 2743 (2000).

[71] L. Frasinski, J. Plumridge and J. P. et al., Phys. Rev. Lett. **86**, 2541 (2001).

[72] J. Posthumus, J. Plumridge and M. T. et al., J. Phys. B **31**, L553 (1998).

[73] B. Manschwetus, T. Nubbemeyer, K. Gorling, G. Steinmeyer, U. Eichmann, H. Rottke and W. Sandner, Phys. Rev. Lett. **102**, 113002 (2009).

[74] T. Zuo and A. Bandrauk, Phys. Rev. A **52**, R2511 (1995).

[75] A. Saenz, Phys. Rev. A **66**, 063408 (2002).

[76] G. Gibson, L. Fang and B. Moser, Phys. Rev. A **74**, 041401 (2006).

[77] T. Sharp, Atomic Data **2**, 119 (1971).

[78] H. Hus, F. Yousif, C. Noren, A. Sen and J. Mitchell, Phys. Rev. Lett. **60**, 1006 (1987).

[79] J. McKenna, M. Suresh, B. Srigengan, I. Williams, W. Bryan, E. English, S. Stebbings, W. Newell, I. Turcu, J. Smith, E. Divall, C. Hooker, A. Langley and J. L. Collier, Phys. Rev. A **73**, 043401 (2006).

[80] J. Posthumus, A. Giles, M.R.Thompson and K. Codling, J. Phys. B **29**, 5811 (1996).

[81] K. Miyazaki, T. Shimizu and D. Normand, J. Phys. B **37**, 753 (2004).

[82] C. Guo and G. Gibson, Phys. Rev. A **63**, 040701 (2001).