

# Atome und Moleküle fundamentaler Bedeutung in intensiven Laserfeldern: He, He<sup>+</sup> und HeH<sup>+</sup>

## Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades  
doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)



vorgelegt dem Rat der Physikalisch-Astronomischen Fakultät  
der Friedrich-Schiller-Universität Jena  
von M.Sc. Philipp Wustelt  
geboren am 26.04.1989 in Jena, Deutschland

Gutachter

1. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Gerhard G. Paulus
2. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Ulrich Eichmann
3. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Peter Hommelhoff

Tag der Disputation: 12.02.2019

# Inhaltsverzeichnis

<b>Kurzfassung</b>	<b>iii</b>
<b>Abstract</b>	<b>v</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Atome und Moleküle in starken Laserfeldern</b>	<b>4</b>
2.1 Die Starkfeldionisation . . . . .	4
2.2 Das Semiklassische Modell . . . . .	5
2.3 Atome in statischen elektrischen Feldern . . . . .	6
2.4 Quasistatische Ionisationsraten . . . . .	7
2.5 Die kritische Feldstärke . . . . .	8
2.6 Nichtadiabatische Theorien . . . . .	8
2.7 Klassische Bewegung des Elektrons im Laserfeld . . . . .	10
2.8 Moleküle in starken Laserfeldern . . . . .	11
2.8.1 Born-Oppenheimer-Näherung . . . . .	11
2.8.2 Schwingungen zweiatomiger Moleküle . . . . .	11
2.8.3 Rotation zweiatomiger Moleküle . . . . .	12
2.8.4 Laserinduzierte Fragmentation von Molekülen . . . . .	12
<b>3 Impulsspektroskopie von atomaren und molekularen Ionen</b>	<b>14</b>
3.1 Einleitung . . . . .	14
3.2 Erzeugung eines Ionenstrahls . . . . .	15
3.3 Laser und Laseroptik . . . . .	17
3.4 Interaktionszone und Strahlüberlagerung . . . . .	17
3.5 Detektorsystem und Auswertung . . . . .	19
3.6 Targetdichte und Zählraten . . . . .	20
3.7 Vergleich mit anderen Techniken . . . . .	20
<b>4 Das He<sup>+</sup>-Ion in starken Laserfeldern: Das adiabatische Limit der Tunnelionisation</b>	<b>22</b>
4.1 Über das Verständnis des Tunneleffekts . . . . .	22
4.2 Die Attoclock zur Untersuchung des Tunneleffekts . . . . .	24
4.3 Das Rätsel der Tunnelzeit in Attoclock-Experimenten . . . . .	27

4.4	Das Helium-Ion . . . . .	28
4.4.1	Einleitung . . . . .	28
4.4.2	Experiment mit $\text{He}^+$ . . . . .	30
4.4.3	Impulsverteilungen für die Ionisation von $\text{He}^+$ . . . . .	31
4.4.4	Bestimmung des Elektronenemissionswinkels . . . . .	31
4.4.5	Auswertung der Attoclock für $\text{He}^+$ . . . . .	33
4.4.6	Semiklassische Simulationen . . . . .	35
4.4.7	Vergleich von CTMC- und TDSE-Simulationen . . . . .	42
4.4.8	Vergleich von Experiment und Simulationen . . . . .	43
<b>5</b>	<b>Doppelionisation von Helium in ultrakurzen Laserpulsen</b>	<b>45</b>
5.1	Einleitung . . . . .	45
5.2	Messung der Doppelionisation neutraler Atome mit dem Ionenstrahl Aufbau . . . . .	47
5.2.1	Einleitung . . . . .	47
5.2.2	Ionenstrahl Aufbau mit Ladungsaustauschzelle . . . . .	47
5.2.3	Ergebnisse für die Neutralisation von Ionen . . . . .	49
5.2.4	Starkfeldionisation eines neutralisierten Atomstrahls . . . . .	49
5.2.5	Schlussfolgerung . . . . .	51
5.3	Ionisationdynamik von Helium in Few-Cycle-Laser-Pulsen . . . . .	51
5.3.1	Einleitung . . . . .	51
5.3.2	Semiklassisches Modell der sequentiellen Doppelionisation . . . . .	53
5.3.3	Simulation der sequentiellen Doppelionisation . . . . .	53
5.3.4	Vergleich von Experiment und Simulation . . . . .	55
5.3.5	Einfluss der Pulsparameter auf die Impulsverteilung . . . . .	57
<b>6</b>	<b>Das <math>\text{HeH}^+</math>-Molekül: Der heteronukleare Grenzfall der Starkfeldionisation</b>	<b>65</b>
6.1	Einleitung . . . . .	65
6.1.1	Das $\text{HeH}^+$ -Molekül als asymmetrisches Molekül . . . . .	65
6.1.2	Das $\text{HeH}^+$ -Molekül als Modellsystem . . . . .	66
6.1.3	Eigenschaften des $\text{HeH}^+$ -Moleküls . . . . .	67
6.2	Experiment mit $\text{HeH}^+$ . . . . .	69
6.2.1	Erzeugung von $\text{HeH}^+$ . . . . .	70
6.2.2	Detektion der Fragmente von $\text{HeH}^+$ . . . . .	70
6.2.3	Ergebnisse für $\text{HeH}^+$ . . . . .	72
6.3	Einfachionisation von $\text{HeH}^+$ . . . . .	73
6.3.1	Intensitätsabhängige KER-Verteilung der Einfachionisation . . . . .	73
6.3.2	Interpretation der Messergebnisse als Folge der Vibrationsanregung . . . . .	75
6.3.3	Vibrationsanregung mit 800 nm- und 400 nm-Photonen . . . . .	76
6.3.4	Rolle der elektronischen Anregung und Enhanced Ionization . . . . .	79
6.4	Isotope von $\text{HeH}^+$ – Vergleich mit $\text{HeD}^+$ . . . . .	80
6.4.1	Isotopeneffekte in $\text{HeH}^+$ . . . . .	80

---

6.4.2	Messung von $\text{HeD}^+$ über den Massendefekt . . . . .	81
6.4.3	Messergebnisse für $\text{HeD}^+$ . . . . .	83
6.4.4	Interpretation der $\text{HeD}^+$ -Ergebnisse . . . . .	83
6.4.5	Vergleich der TDSE-Ergebnisse für $\text{HeD}^+$ und $\text{HeH}^+$ . . . . .	85
6.5	Untersuchung der Doppelionisation . . . . .	87
6.5.1	KER-Verteilung der Doppelionisation . . . . .	87
6.5.2	Semiklassische Simulation der Doppelionisation in $\text{HeH}^+$ . . . . .	88
6.5.3	Vergleich von Messung und Simulation . . . . .	88
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>91</b>
<b>8</b>	<b>Anhang</b>	<b>94</b>
8.1	Separation der Schrödingergleichung in parabolischen Koordinaten . . . . .	94
8.2	Das Modell für $\text{HeH}^+$ der TDSE-Simulation . . . . .	97
8.3	Erzeugung intensiver ultrakurzer Laserpulse . . . . .	99
8.3.1	Lasersystem . . . . .	99
8.3.2	Formung von Laserpulsen mit einem akustooptischen Modulator . . . . .	100
8.3.3	Erzeugung von Few-Cycle-Laserpulse durch kohärente Kombination . . . . .	105
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>111</b>
	<b>Publikationen</b>	<b>122</b>
	<b>Konferenzbeiträge</b>	<b>123</b>
	<b>Ehrenwörtliche Erklärung</b>	<b>127</b>

# Kurzfassung

In dieser Doktorarbeit wurde die Interaktion von drei fundamentalen Ein- und Zweielektro-nensystemen in intensiven, ultrakurzen Laserfeldern experimentell untersucht und mit theoretischen Vorhersagen verglichen. Die Verwendung einer Ionenstrahlapparatur erlaubt es, einen Strahl atomarer sowie molekularer Ionen zu erzeugen und die dreidimensionalen Impulse der ionischen und neutralen Fragmente nach der Laserinteraktion in Koinzidenz zu detektieren.

Um den fundamentalen Vorgang des Tunnelns von Elektronen zu verstehen und Modelle der Starkfeldionisation zu testen, wurde in dieser Arbeit die Attoclock-Methode auf das Heliumion angewendet, einem Einelektronensystem mit der doppelten Ladung des Wasserstoffatoms. Dies ermöglicht die Untersuchung des Tunnelprozesses nahe am Idealfall - dem quasistatischen Tunnelregime. Die Analyse der experimentell gemessenen Elektronenemissionswinkel als Funktion des radialen Impulses zeigt, dass die Emissionswinkel für  $\text{He}^+$  deutlich kleiner sind als für typischerweise genutzte Atome mit niedrigem Ionisationspotential. Die Verwendung von  $\text{He}^+$  führt zu einem viel geringeren Keldysh-Parameter, was die Relevanz nichtadiabatischer Effekte, die die Interpretation der Attoclock erschweren, signifikant reduziert. Die Ergebnisse für den Elektronenemissionswinkel sind in guter Übereinstimmung mit theoretischen Vorhersagen aus der Lösungen der TDSE sowie semiklassischer Simulationen, die keine Tunnelzeiten beinhalten.

Weiterhin wurde die Doppelionisation des neutralen Heliumatoms durch nahezu zirkular polarisierte Few-Cycle-Laserpulse untersucht. Unter Nutzung semiklassischer Monte-Carlo-Simulationen wurden experimentelle und simulierte Ionenimpulsverteilungen detailliert verglichen und die Abhängigkeit der Doppelionisation von der Subzyklenform des ionisierenden Few-Cycle-Laserfeldes demonstriert. Die auf einem rein sequentiellen Ionisationsmodell basierenden Simulationen zeigen eine bemerkenswert gute Übereinstimmung mit den experimentellen Beobachtungen und können die für die Doppelionisation mit Few-Cycle-Laserpulsen charakteristische 6-Peak-Struktur der gemessenen Ionenimpulsverteilungen reproduzieren.

Neben der Interaktion atomarer Systeme mit starken Laserfeldern wurde in dieser Arbeit die erste experimentelle Untersuchung des einfachsten asymmetrischen Moleküls, dem Heliumhydridion, in starken Laserfeldern durchgeführt. Es konnte gezeigt werden, wie der asymmetrische Aufbau und das daraus folgende permanente Dipolmoment die laserinduzierte Fragmentation des Heliumhydridions beeinflusst. Sowohl das Experiment als auch die Theorie für Dissoziation, Einfachionisation und Doppelionisation von  $\text{HeH}^+$  und dem Isotop  $\text{HeD}^+$  demonstrieren, dass, abhängig von der Laserwellenlänge, für das asymmetrische Molekül die direkte Vibrationsanregung vor der Ionisation zur Streckung des Moleküls führt. Die Dynamik von  $\text{HeH}^+$  steht im Gegensatz zu den bekannten symmetrischen Molekülen und gibt interessante Einblicke in das Verhalten asymmetrischer Systeme.

# Abstract

This work focuses the control of fundamental single- and two-electron systems using intense, ultra-short laser fields and includes new measurements, novel data evaluation techniques, and interpretation using various theoretical techniques. The measurements were carried out using an ion-beam apparatus that produces a beam of atomic or molecular ions, which is exposed to the controlling laser pulses causing fragmentation and/or ionization. The three-dimensional momenta of these fragments are then detected in coincidence, which allows for reconstruction of the interaction dynamics.

In this thesis, to understand the fundamental timing of the laser-induced electron tunneling, the attoclock method was applied to the helium ion, a single-electron system with twice the charge of hydrogen. This serves to test and refine models of tunneling ionization and the larger intensity required for ionization enables the investigation of the tunneling process close to the ideal case – in the quasi-static tunnel regime. Evaluation of the measured electron-emission angle as a function of the radial momentum for  $\text{He}^+$  is significantly smaller than for, the typically used, atoms with lower ionization potential. Moreover, using  $\text{He}^+$  results in a much lower Keldysh parameter, which significantly reduces the importance of nonadiabatic effects that can complicate interpretation. The results are in good agreement with TDSE solutions as well as semiclassical simulations that do not include tunneling times.

Further, double ionization of the helium atom by nearly circularly polarized few-cycle laser pulses was investigated. The dependence of the sequential double ionization on the subcycle shape of the ionizing few-cycle laser field was demonstrated by comparing measured ion momentum distributions with classical Monte Carlo simulations. Simulations based on a purely sequential ionization model show a remarkable good agreement with the experimental observations and reproduce the characteristic 6-peak structure of the measured ion momentum distribution after double ionization with few-cycle laser pulses.

In addition to laser-induced ionization of fundamental atomic systems with strong laser fields, in this work the first experimental investigation of the simplest asymmetric molecule, the helium hydride ion, in strong laser fields was performed. Helium hydride is only stable as an ion and, therefore, an ion beam apparatus is required for its investigation. This study focused on how the asymmetric structure, and the resulting permanent dipole moment of the  $\text{HeH}^+$ , influence laser-induced fragmentation. Both experiment and theory for dissociation, single ionization and double ionization of  $\text{HeH}^+$  and the isotopologue  $\text{HeD}^+$  reveal, that for the asymmetric molecule, direct vibrational excitation, with almost no electronic excitation as the initial process, dictates the fragmentation process. The dynamics of this extremely asymmetric molecule contrasts the symmetric molecules and gives new and fundamental insights into the behavior of molecular systems in general.

# Kapitel 1

## Einleitung

Die Physik strebt danach, die Grundbausteine der Natur zu identifizieren und die Gesetze ihrer Wechselwirkung zu ergründen [1]. Experimente haben einen herausragenden Stellenwert, da nur durch sie neue Naturerscheinungen beobachtet und Vorhersagen von physikalischen Theorien überprüft und gegebenenfalls falsifiziert werden können [2]. Für die Theorienbildung sind dabei besonders einfache Systeme von großer Bedeutung, da bei Ihnen durch die Interaktion einer geringen Anzahl von Teilchen die zugrunde liegende Physik mit überschaubarer Komplexität erfasst werden kann. Besonders deutlich wird dies beim Wasserstoffatom und seiner Rolle in der Atomphysik. Tatsächlich zeigt es als das am einfachsten aufgebaute Atom den Weg zum Verständnis aller Atome auf, nachdem die quantenmechanische Schrödinger- und Dirac-Gleichung nur für ein Teilchen im zentralsymmetrischen Potenzial, und damit nur für das Wasserstoffatom oder wasserstoffähnliche Atome wie das einfach geladene Heliumion, analytisch lösbar sind [3].

Es ist ein wichtiges Anliegen, diese fundamentalen Quantensysteme auch zeitaufgelöst zu studieren. Zur Beobachtung dynamischer Vorgänge in Atomen oder Molekülen wird eine extrem hohe Zeitauflösung benötigt, da die Bewegung der Elektronen in der Atomhülle auf der Zeitskala von Femtosekunden ( $10^{-15}$  Sekunden) bis Attosekunden ( $10^{-18}$  Sekunden) abläuft [4]. Hier haben in den letzten Jahren die Fortschritte in der Erzeugung ultrakurzer Laserpulse die Möglichkeit geschaffen, diese sehr schnellen Vorgänge sichtbar zu machen. Die mit Femtosekundenlasern erreichbaren Energiedichten ermöglichen es zugleich, für sehr kurze Zeitintervalle sehr hohe elektrische Felder zu erzeugen. Die erzielten Feldstärken sind mit der Stärke des Coulomb-Feldes, dem ein gebundenes Elektron in einem Atom ausgesetzt ist, vergleichbar. Damit wird das Starkfeldregime erreicht, in dem das Laserfeld in der Licht-Materie-Wechselwirkung nicht mehr im Rahmen der Störungstheorie behandelt werden kann.

Eine wichtige Grundlage für die Starkfeldphysik stellen die theoretischen Arbeiten von Keldysh aus dem Jahr 1965 dar, in denen die Ionisation eines Atoms durch eine elektromagnetische Welle als Tunnelionisationsprozess behandelt wird [5]. Erst Jahrzehnte später gelang der experimentelle Nachweis dieses Mechanismus [6]. Dem initialen Schritt der Tunnelionisation folgen eine Reihe neuer charakteristischer Effekte [7]. Dazu zählen die elastische Streuung der Photoelektronen am Ursprungatom [8], die nichtsequentiellen Doppelionisation [9] und die Erzeugung von höheren Harmonischen und von Attosekundenpulsen [10]. Die auf der Tunnelionisation beruhenden Phänomene begründeten somit das Gebiet der Attosekundenphysik für die Untersuchung der Licht-Materie-Wechselwirkung [11; 4].

Wie in allen Bereichen der Physik sind für das fundamentale Verständnis auch in der Starkfeld-

physik vor allem einfache Systeme von hoher Bedeutung. Eine herausragende Rolle nehmen dabei Ein- und Zweielektronensysteme ein, da sie am ehesten eine geschlossene theoretische Beschreibung im Rahmen der Quantenmechanik ermöglichen. Die vorliegende Arbeit hat daher zum Ziel, einfache atomare und molekulare Systeme von grundlegender Bedeutung in starken Laserfeldern zu untersuchen. Dazu wird die Interaktion von drei fundamentalen Ein- bzw. Zweielektronensystemen, dem Heliumion, dem Heliumatom und dem Heliumhydridion, mit intensiven Laserfeldern in Experimenten gemessen und mit theoretischen Vorhersagen verglichen. Die Übergänge von einem Atom mit einem Elektron im  $\text{He}^+$  zu einem Atom mit zwei Elektronen im Helium sowie der von atomaren Systemen zu Molekülen stellen dabei jeweils einen großen Sprung in der Komplexität der untersuchten Systeme dar.

Bislang wurde die Untersuchung der Wechselwirkung von Materie mit intensiven Laserpulsen mit Hilfe von Experimenten von der Nutzung neutraler Atome oder Moleküle dominiert. Die vorliegende Arbeit verfolgt einen anderen Ansatz. Als Untersuchungsobjekt dienen Ionen, die im Plasma einer Ionenquelle erzeugt werden und in Form eines Ionenstrahls hoher kinetischer Energie mit den Laserpulsen in Interaktion gebracht werden. Dies ermöglicht die Untersuchung elementarer Systeme wie  $\text{He}^+$  und  $\text{H}_2^+$  [12] sowie exotischer Molekülen wie  $\text{HeH}^+$  [13]. Zudem eröffnet die Verwendung von Ionen einen Parameterbereich der Starkfeld-Laserphysik, der mit neutralen Atomen nicht erreichbar ist.

Gegenstand des ersten Teiles der Arbeit ist die Ionisation von atomaren Systemen in starken Laserfeldern. Mit dem Heliumion wird die Ionisation eines Einelektronensystems durch starke Laserfelder untersucht. Dieses Ion hat denselben Stellenwert für die theoretische Beschreibung atomarer Systeme wie das Wasserstoffatom [14] und ermöglicht die Untersuchung der Tunnelionisation, die bei typischen Laserwellenlängen von 800 nm für das Heliumion den dominierenden Ionisationsmechanismus darstellt. Der Tunnelprozess ist ein fundamentaler Prozess der Quantenmechanik und in vielen Bereichen der Physik relevant. Obwohl der Tunnelprozess im Allgemeinen und als Ionisationsmechanismus von zahlreichen Forschern schon ausführlich untersucht wurde, stellt er weiterhin den Gegenstand aktueller intensiver Forschungsaktivitäten dar [15; 16; 17]. Insbesondere fundamentale Fragen über das Verständnis des Tunneleffektes werden anhaltend und intensiv diskutiert und betreffen vor allem die Frage: Wie lange benötigt ein tunnelndes Teilchen für den Tunnelvorgang? Diese Fragestellung wird in dieser Arbeit für Experimente mit dem Einelektronensystem  $\text{He}^+$  untersucht.

Für Systeme mit mindestens zwei Elektronen ist in starken Laserfeldern auch die Doppelionisation relevant [18; 19]. Dabei werden durch das Laserfeld beide Elektronen aus dem Atom herausgelöst. Hier kann grundsätzlich zwischen der sequentiellen und der nichtsequentiellen Doppelionisation (NSDI) unterschieden werden. Sequentiell heißt im Grunde, dass die Elektronen nacheinander durch zwei *unabhängige* Ionisationsprozesse aus dem Atom befreit werden. Als nichtsequentielle Doppelionisation wird in der Starkfeld-Laserphysik das Phänomen bezeichnet, dass das erste durch das Laserfeld aus dem Atom gelöste Elektron nach der Beschleunigung im Laserfeld ein zweites Elektron aus dem Atom herausschlagen kann. Wenn NSDI z.B. bei hinreichend stark elliptisch polarisierter Laserstrahlung unterdrückt ist, kann die Doppelionisation in intensiven Laserfeldern in sehr guter Näherung als sequentieller Prozess verstanden werden. Ob diese Annahme z.B. bei extrem kurzen Pulsen, also wenn beide Ionisationsprozesse in ein enges Zeitfenster gepresst werden, zusammenbricht, ist nicht hinreichend erforscht. Wir benutzen für diesen hypothetischen Effekt das Oxymoron *korrelierte sequentielle* Doppelionisation.

Sie ist Gegenstand des zweiten Kapitels dieser Arbeit, in dem die Doppelionisation des einfachsten Zweielektronensystems, dem Heliumatom, in elliptisch polarisierten Laserpulsen behandelt wird.

Im dritten Teil der Arbeit wird die Dynamik einfacher Moleküle in starken Laserfeldern am Beispiel des Heliumhydridions untersucht. Für Moleküle sind die gleichen Phänomene, die für Atome beobachtet werden und mit der Bewegung der Elektronen verbunden sind, relevant. Es kommen jedoch mehrere Freiheitsgrade dazu, die aus der Bewegung der Kerne folgen. Die Kerndynamik verläuft im Vergleich zur elektronischen Bewegung auf längeren Zeitskalen, aber immer noch auf der Zeitskala der Laserpulse. Der ungeheure Anstieg der Komplexität des Problems sei durch ein Bonmot des Miterfinders des Lasers und Nobelpreisträgers, Arthur Leonard Schawlow, illustriert: "*A diatomic molecule is a molecule with one atom too many.*" [20]. Auch im Kontext der Starkfeld-Laserphysik erinnert man sich unwillkürlich an Schawlows frustrierte Bemerkung. Die Schwingungs- und Rotationsbewegungen und das Fehlen der Kugelsymmetrie machen die Erklärung und die Kontrolle der quantenmechanischen Eigenschaften von Molekülen viel schwieriger als dies für die einfacheren Atome der Fall ist. Dennoch haben Physiker in den letzten Jahrzehnten begonnen, mit Molekülen immer kompliziertere und präzisere Experimente durchzuführen, um ein physikalisches Verständnis dieser Systeme zu erlangen.

Die Fragmentation von einfachen Molekülen, die mit intensiven Laserpulsen interagieren, ist auch deswegen von großem Interesse, da sie Wege aufzeigen, eines der Hauptziele der Molekülphysik, die Kontrolle chemischer Reaktionen, zu erreichen. Bisher basiert ein Großteil des Verständnisses der Fragmentation von einfachen Molekülen in starken Laserfeldern auf dem einfachsten Referenzmolekül, dem Wasserstoffmolekülion  $\text{H}_2^+$ . So wurden wichtige Effekte der Interaktion von Molekülen mit Laserpulsen wie die Above-Threshold-Dissoziation [21] und Bond-Softening [22] für das  $\text{H}_2^+$ -Molekül beschrieben. Damit ist dieses Molekül nicht nur von fundamentaler Bedeutung, sondern auch sehr speziell, da es sich um eine perfekt symmetrische und damit unpolare Verbindung handelt. Um ein vollständiges Bild molekularer Prozesse zu gewinnen, ist es daher von ebenso großer Wichtigkeit, asymmetrische und damit polare Systeme zu untersuchen.

Das einfachste asymmetrische Molekül ist das Heliumhydridion ( $\text{HeH}^+$ ). Es ist in vielerlei Hinsicht eine sehr faszinierende Verbindung, was sich bereits in der Tatsache zeigt, dass es mutmaßlich das erste Molekül war, das sich nach dem Urknall bildete [23]. Da das Heliumhydrid nur als Ion stabil ist, kann es nur mit dem erheblichen Aufwand einer Ionenstrahlanlage erzeugt werden. Die Untersuchung seiner Dynamik in Laserfeldern ist jedoch besonders relevant, da es den Grenzfall einer asymmetrischen Verbindung darstellt und damit alle übrigen Verbindungen zwischen den Extremen des perfekt symmetrischen  $\text{H}_2^+$  und dem asymmetrischen  $\text{HeH}^+$  liegen. Der Fokus der Untersuchungen für die laserinduzierte Fragmentation des Heliumhydridions liegt naturgemäß in der Frage: Wie beeinflusst der asymmetrische Aufbau des  $\text{HeH}^+$  die Dynamik in starken Laserfeldern? Es wird sich zeigen, dass das permanente Dipolmoment, welches eine Konsequenz der elektronischen Asymmetrie des  $\text{HeH}^+$  ist, ein Verhalten herruft, dass sich wesentlich von den Beobachtungen für symmetrische Moleküle wie  $\text{H}_2^+$  unterscheidet.

## Kapitel 2

# Atome und Moleküle in starken Laserfeldern

*Im folgenden Kapitel werden die für diese Arbeit wichtigen theoretischen Konzepte für die Interaktion von Atomen und Molekülen mit starken Laserfeldern erläutert. Dazu gehört vor allem der Prozess der Starkfeldionisation. Ausführlichere Darstellungen zu diesem Thema finden sich in zahlreichen Übersichtsartikeln [24; 25; 26; 27; 28; 29].*

### 2.1 Die Starkfeldionisation

Wenn Atome oder Moleküle hochintensiver Laserstrahlung ausgesetzt werden, kommt es zur Ionisation der Atome, d.h. im Atom gebundene Elektronen werden durch die Interaktion mit dem Licht aus dem Atom herausgelöst.

Für das in dieser Arbeit relevante Regime der nichtlinearen Photoionisation von Atomen und Ionen, in dem die Photonenenergie deutlich kleiner als das Ionisationspotential ist, basiert die theoretische Beschreibung jenseits von Störungstheorie zu einem großen Teil auf den Arbeiten von Keldysh aus dem Jahr 1964 [5]. Tatsächlich sind die Grenzfälle seiner Theorie einerseits die bereits bekannte, mit Störungstheorie zugängliche Multiphotonenionisation und andererseits die Tunnelionisation. Um zwischen diesen beiden Ionisationsmechanismen zu unterscheiden, führte Keldysh den dimensionslosen Parameter  $\gamma$  ein, der heute als Keldysh-Parameter bekannt ist.

Die Idee der Tunnelionisation beruht darauf, dass ein starkes Laserfeld das Potential eines Atoms so stark verformt, dass ein gebundenes Elektron durch die Potentialbarriere tunneln kann, die durch die Superposition des Laserfeldes mit dem atomaren Coulomb-Potential in jeden Halbzyklus der Laserfeldoszillation entsteht (siehe Abb. 2.1 (b)). Für eine hinreichend niedrige Frequenz des Laserfeldes kann die Barriere als quasistatisch angesehen und die Ionisation mit der Tunnelrate für zeitlich konstante elektrische Felder beschrieben werden [27]. Der Parameter  $\gamma$  vergleicht daher die charakteristische Zeitskala der Bewegung des Elektrons unter der Barriere mit der Laserfrequenz  $\omega_L$ . Mit der Bindungsenergie bzw. Ionisationsenergie des Elektrons  $I_p$  und der elektrischen Feldstärke  $E$  berechnet sich der Keldysh-Parameter in atomaren Einheiten zu

$$\gamma = \frac{\omega_L}{\omega_{Tunnel}} = \frac{\omega_L \sqrt{2I_p}}{E}. \quad (2.1)$$

Das Tunnelionisationsregime ist also durch  $\gamma \ll 1$  charakterisiert (siehe Abb. 2.1(a)). Für geringere Intensitäten und/oder kurze Wellenlängen ergibt sich  $\gamma \gg 1$  und die Ionisation ist als Multiphotonenprozess zu verstehen, bei dem der Ionisationszeitpunkt zeitlich nicht auf den Bruchteil eines optischen Zyklus eingegrenzt werden kann.

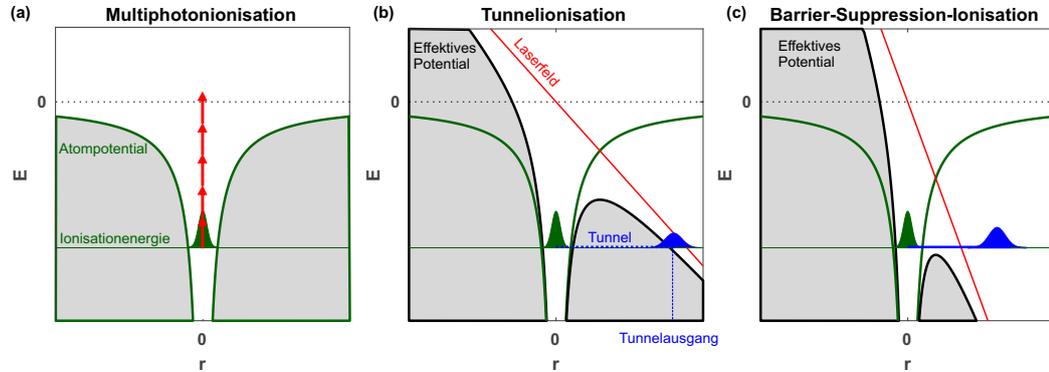


Abbildung 2.1: Ionisationsmechanismen in starken Laserfeldern: (a) Ionisation durch Absorption mehrerer Photonen. (b) Bildung einer Potentialbarriere aus der Überlagerung von atomaren Potential und Laserfeld ermöglicht das Tunneln des Elektrons aus dem gebundenen Zustand ins Kontinuum. (c) Für hohe Feldstärken wird das effektive Potential durch das Laserfeld soweit abgesenkt, dass das Elektron ohne Tunneln ins Kontinuum gelangen kann (Prozess der Barrier-Suppression-Ionization, siehe Kap. 2.5).

Zur Beschreibung der Tunnelionisation von Atomen wurden eine Vielzahl verschiedener Theorien entwickelt. In der Regel werden dabei folgende Approximationen genutzt:

- Dipolnäherung: Vereinfachend wird ausschließlich die Interaktion mit dem elektrischen Feld und nicht mit der magnetischen Komponente betrachtet [30].
- Einelektronennäherung: Dabei wird statt des Atoms mit allen Elektronen im Laserfeld nur ein einzelnes aktives Elektron behandelt, das in einem effektiven Atompotential gebunden ist und mit dem Laserfeld in Wechselwirkung tritt [25].

## 2.2 Das Semiklassische Modell

Die Interpretation der Ionisation als Tunnelvorgang ist Inspiration für einen theoretischen Ansatz, der die mit der Ionisation verbundenen Phänomene durch eine Abfolge von zwei oder drei Schritten erklären kann.

Dieser im Allgemeinen auch als semiklassisches Modell bezeichnete Ansatz beruht auf der Kombination von Aspekten der klassischen Mechanik und der Quantenmechanik [7]. Zuerst wird das Elektron durch einen quantenmechanischen Ionisationsprozess aus dem Atom befreit. Danach kann das Elektron als klassisches Teilchen beschrieben werden, welches sich im kombinierten Potential des Ions und des Laserfeldes bewegt. Das Elektron wird durch das Laserfeld vom Ion weg beschleunigt und sein Impuls kann mit dem Auftreffen auf einem Detektor gemessen werden. In einem dritten Schritt kann das Elektron für bestimmte Bedingungen auch wieder auf das Ion treffen und dabei streuen (Rückstreuung) [8], ein anderes Elektron aus dem Ion herausstoßen (Nichtsequentielle Doppelionisation) [9] oder unter Aussendung von Photonen mit dem Ion kombinieren [10].

Die Bewegung des Elektrons als klassisches Teilchen in der Kombination von Laserfeld und atomarem Potential  $V$  wird mit der klassischen Bewegungsgleichung beschrieben, die in atomaren Einheiten

$$\frac{d^2\mathbf{r}}{dt^2} = -\mathbf{E}(t) - \nabla V(r). \quad (2.2)$$

lautet. Beginnend von der allgemeinen Lösung

$$\frac{d\mathbf{r}(t)}{dt} = - \int_{t_0}^t [\mathbf{E}(t') + \nabla V(r(t'))] dt' + \mathbf{v}_0. \quad (2.3)$$

mit der Startzeit  $t_0$  und der Initialgeschwindigkeit  $\mathbf{v}_0$  können die Impuls- und Energieverteilung durch Integration berechnet werden.

Eine zentrale Schwierigkeit innerhalb des semiklassischen Modells stellt die korrekte Beschreibung des Ionisationsschrittes dar. Dazu wird eine Theorie benötigt, die Wahrscheinlichkeiten für die Ionisation mit Subzyklengenauigkeit bereitstellt und die Erzeugung eines klassischen Ensembles von Ionisationszeiten, Anfangsgeschwindigkeiten und Startorten erlaubt [27].

### 2.3 Atome in statischen elektrischen Feldern

Um die Ionisation von Atomen in intensiven Laserfeldern zu verstehen, ist es hilfreich zuerst Atome in einem statischen elektrischen Feld zu betrachten. Streng genommen ist dies nur im quasistatischen Limit für einen Keldysh-Parameter  $\gamma \ll 1$  gerechtfertigt [5; 31].

Der Hamiltonian für ein Elektron in einem Coulomb-Potential mit der Kernladungszahl  $Z$  und in einem statischen elektrischen Feld  $\mathbf{E} = E\mathbf{e}_x$  lautet:

$$\hat{H} = \frac{\mathbf{p}^2}{2} - \frac{Z}{r} + Ex. \quad (2.4)$$

Das elektrische Feld verformt das Coulomb-Potential so stark, dass sich eine Barriere ausbildet, durch die ein im Atom gebundenes Elektron tunneln kann (siehe Abb. 2.1).

#### Modell mit $\delta$ -förmigem Atompotential

Im einfachsten Fall kann die Ausdehnung des atomaren Potentials völlig vernachlässigt werden. Mathematisch kann dies durch ein  $\delta$ -Potential beschrieben werden. Für ein Atompotential dieser Form kann der Tunnelausgang  $x_e$  bei eindimensionaler Betrachtung der Trajektorie des Elektrons entlang der x-Achse berechnet werden und beträgt

$$x_e = -\frac{I_p}{E}. \quad (2.5)$$

#### Eindimensionales Coulomb-Potential

Wenn das Tunnelproblem vereinfacht als eindimensionales Problem entlang der Richtung der Laserpolarisation betrachtet wird, hat das Potential die Form  $V = -Z/x$ . Die Position des Maximums der Barriere ist dann für  $E > 0$  an  $x_{Bar} = -\sqrt{\frac{Z}{E}}$ . Für den Tunnelausgang folgt durch Lösung von  $-Z/x + E \cdot x = -I_p$  mit einer quadratischen Gleichung [32]

$$x_e = -\frac{1}{2E}(I_p + \sqrt{I_p^2 - 4ZE}). \quad (2.6)$$

### Dreidimensionales Coulomb-Potential

Die dreidimensionale Schrödingergleichung mit dem Hamiltonian in Gl. 2.4 für Einelektronensysteme ist in parabolischen Koordinaten separierbar [33; 31]. Einige Schritte der Berechnung sind im Anhang 8.1 dargestellt.

Mit der Beschreibung des Tunnelprozesses in parabolischen Koordinaten kann die Position des Tunnelausganges berechnet werden, sodass sich der Tunnelausgang nach der Umrechnung in kartesische Koordinaten an der Stelle

$$x_e = -\frac{\eta_e}{2} = -\frac{1}{2E} \left( I_P + \sqrt{I_P^2 - 4\beta_2 E} \right) \quad (2.7)$$

befindet. Allerdings sollten Ansätze, nach der Tunnelionisation Elektronentrajektorien an diesem Punkt zu beginn, zurückhaltend beurteilt werden, da die Wellenfunktion des Elektrons über eine erhebliche Ausdehnung verfügt.

Auf der Beschreibung des Tunnelproblems in parabolischen Koordinaten und einer Analyse der semiklassischen Wellenfunktionen basiert auch die Herleitung der quasistatischen Wahrscheinlichkeit der Tunnelionisation [33]. Die Ionisationsrate für das Wasserstoffatom, die als Landau-Rate bezeichnet wird, lautet dann

$$\Gamma = \frac{4}{E} \exp\left(-\frac{2}{3E}\right). \quad (2.8)$$

Die Tunnelwahrscheinlichkeit steigt exponentiell mit der Stärke des elektrischen Feldes an. Dieses Verhalten findet sich auch in einer allgemeineren Form der quasistatischen Ionisationsrate wieder.

## 2.4 Quasistatische Ionisationsraten

Oftmals wird die quasistatische Behandlung des Ionisationsvorganges zur Bestimmung von Ionisationsraten als ADK-Theorie nach den Autoren Ammosov, Delone und Krainov [34] bezeichnet, obwohl die Ergebnisse bereits zuvor durch andere Autoren beschrieben wurden [26]. Die ADK-Theorie ist somit nur als ein Spezialfall der allgemeineren von Perelomov, Popov und Terent'ev aufgestellten Theorie zu sehen (siehe Kap. 2.6) [35].

Wenn die Emission eines Elektrons aus einem Atom über Tunnelionisation stattfindet, kann dies durch die quasistatische Ionisationsrate  $\Gamma_{nlm}$  beschrieben werden, die entsprechend der Notation von [36] in atomaren Einheiten folgende Gestalt hat:

$$\Gamma_{nlm} = \frac{|C_{nlm}|^2 Q^2}{(2\kappa)^{|m|} |m|!} \left(\frac{\kappa^2}{E}\right)^{2Z/\kappa - |m| - 1} \exp\left(-\frac{2\kappa^3}{3E}\right) \quad (2.9)$$

$$Q^2 = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2(l-|m|)!} \quad (2.10)$$

wobei  $E(t)$  die instantane elektrische Feldstärke,  $I_p$  in  $\kappa = \sqrt{2I_p}$  das Ionisationspotential des Atoms sowie  $n$ ,  $l$  und  $m$  die Haupt-, Drehimpuls- und Bahndrehimpulsquantenzahl bezeichnen. Der Faktor  $C_{nlm}$  beschreibt die Amplitude der gebundenen elektronischen Wellenfunktion im Bereich der Barriere [26].

Innerhalb dieser Theorie kann auf die Anfangsgeschwindigkeit des Elektrons nach dem Tunneln geschlossen werden [37]. Die entsprechende Verteilung der Anfangsimpulse kann aus der

gebundenen Wellenfunktion des Elektrons berechnet werden, sodass näherungsweise für die Verteilung der longitudinalen Impulse  $p_{\parallel}$

$$|\psi_{\parallel}|^2 \propto |\psi_{0\parallel}|^2 \exp\left(-p_{\parallel}^2 \frac{\omega^2 (2I_p)^{3/2}}{3E^3}\right) \quad (2.11)$$

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

$$|\psi_{\perp}|^2 \propto |\psi_{0\perp}|^2 \exp\left(-p_{\perp}^2 \frac{\sqrt{2I_p}}{E}\right) \quad (2.12)$$

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

## 2.5 Die kritische Feldstärke

Für sehr hohe Laserintensitäten bzw. elektrische Feldstärken kann der Potentialberg unter das Bindungspotential abgesenkt werden, sodass das Elektron ohne Tunneln aus dem Atom frei wird (siehe Abb. 2.1 (c)). Dieser Ionisationsvorgang wird in der englischsprachigen Literatur als Barrier-Suppression-Ionisation bezeichnet. An diesem Punkt ist zu erwarten, dass die Ionisationsrate stark ansteigt. Für eine eindimensionale Betrachtung des effektiven Potentials  $V = -\frac{Z}{r} + Ex$  befindet sich das Maximum der Barriere bei  $x_b = -\sqrt{Z/E}$  und die Energie beträgt  $V(x_b) = -\sqrt{ZE}$ . Damit folgt für die kritische Feldstärke, an der das Maximum des effektiven Potentials unter die Bindungsenergie verschoben wird,

$$E_c = \frac{1}{Z} \left(\frac{I_p}{2}\right)^2. \quad (2.13)$$

Wendet man dieses Ergebnis für das einfachste Atom, das Wasserstoffatom, an, liefert Gl. 2.13 das Ergebnis  $E_c=0,0625$  a.u. Es stellt sich heraus, dass eine Behandlung des Problems in parabolischen Koordinaten einen um mehr als Faktor zwei größeren Wert liefert [38]. Die Störungsrechnung liefert [31]

$$E_c \approx (\sqrt{2} - 1) I_p^{3/2}. \quad (2.14)$$

und die kritische Feldstärke beträgt also  $E_c=0,146$  a.u.

Dieses Ergebnis gilt jedoch nur für die spezielle Symmetrie von wasserstoffartigen Systemen und nicht für Mehrelektronensysteme. Daher wird Gl. 2.13 oft in der Literatur benutzt und dient meist als Abschätzung der Intensität, bei welcher ein bestimmter Ladungszustand auftritt [31].

## 2.6 Nichtadiabatische Theorien

In der quasistatischen Betrachtung wurde das elektrische Feld wie ein langsam variierendes statisches Feld behandelt. Es existiert somit keine Frequenzabhängigkeit der Ionisationsrate. Die allgemeinere Behandlung des Ionisationsvorganges in einer nichtadiabatischen Theorie wurde durch Perelomov, Popov und Terent'ev durchgeführt [35; 39]. Nach der PPT-Theorie sind sowohl die Ionisationsrate als auch der Ort und der Impuls des Elektrons nach der

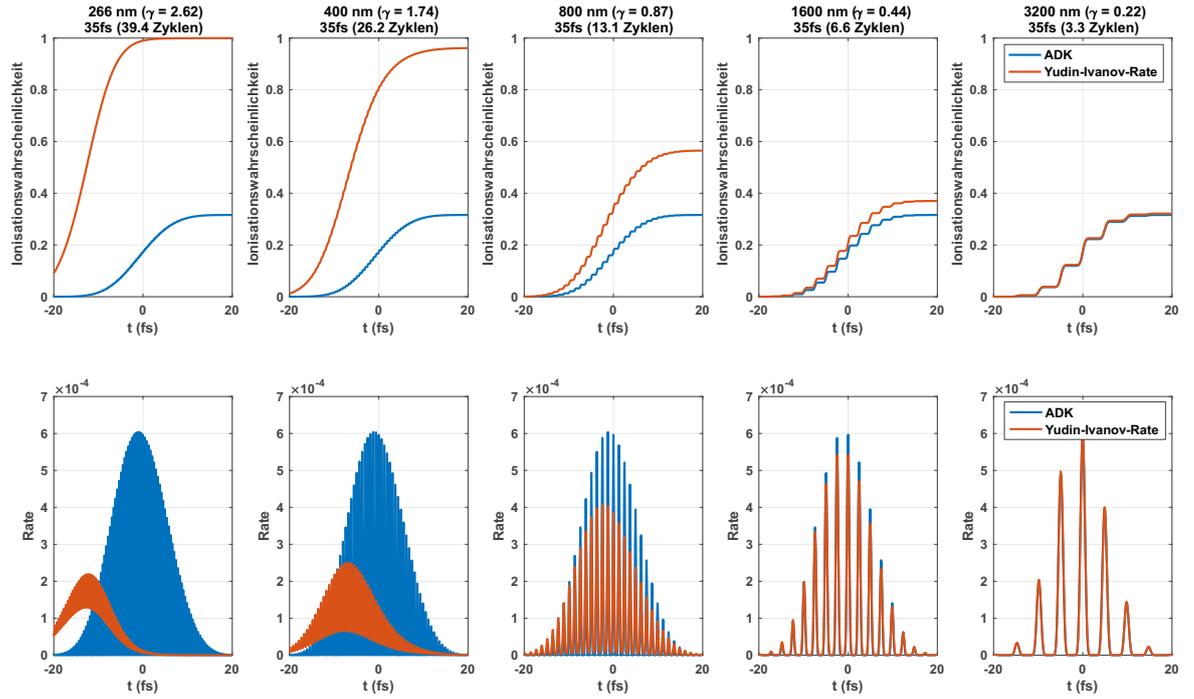


Abbildung 2.2: Ionisation und Ionisationsrate des Wasserstoffatoms für die adiabatische ADK- und die nichtadiabatische YI-Rate bei  $1,5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  und einer Pulsdauer von 35 fs für verschiedene Laserwellenlängen. Mit sinkendem Keldysh-Parameter nehmen die Beiträge der Multiphotonenionisation ab und die beiden Theorien sagen die gleiche Ionisationsamplitude voraus.

Ionisation von der Frequenz des Laserfeldes bzw. dem entsprechenden Keldysh-Parameter abhängig [35; 26; 40; 41].

Auf der PPT-Theorie aufbauend, geben Yudin und Ivanov einen Ausdruck für eine instantane Ionisationsrate an, die sowohl im Bereich der Multiphoton- als auch der Tunnelionisation gültig ist [42]. Die Rate ist direkt vom Keldysh-Parameter abhängig und kann damit auch im Übergangsbereich  $\gamma \approx 1$  verwendet werden, in dem die quasistatische Tunnelrate die Ionisationsrate nicht korrekt beschreibt.

Um den Unterschied zur quasistatischen ADK-Rate zu illustrieren, ist in Abb. 2.2 ein Vergleich zwischen der ADK-Rate und der Yudin-Ivanov-Rate für das Wasserstoffatom über einen großen Bereich von Wellenlängen dargestellt. Berechnet wurden sowohl die zeitabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit als auch die Ionisationsrate für einen 35 fs-Puls mit einer Intensität von  $1,5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ . Anhand der entsprechenden Keldysh-Parameter wird dabei das Ionisationsregime von einer Ionisation mit hohem Multiphotonenbeitrag bis zur vollständigen Tunnelionisation variiert.

Im Vergleich zur adiabatischen Tunnelrate ist die nichtadiabatische Ionisationsrate für größere Keldysh-Parameter aufgrund der nichtadiabatischen Effekte erhöht. Dies kann entweder als Absorption von Photonen vor dem Tunnelprozess oder als Energiegewinn des Elektrons in der zeitlich variierenden Barriere während des Tunnelprozesses aufgefasst werden [43; 44]. Im Bereich der Tunnelionisation zeigen die ADK- und die YI-Rate das exakt gleiche Ergebnis.

Die Auswirkungen einer nichtadiabatischen Betrachtung auf den Startort und Impuls eines Elektrons werden u.a. von Boge *et al.* und Ni *et al.* beschrieben [45; 46; 41]. Für den Startort

des Elektrons nach der nichtadiabatischen PPT-Theorie folgt  $r_{PPT} = \frac{E}{\omega^2}(\cosh(\tau_0) - 1)$ , wobei sich  $\tau_0$  aus der Lösung der Gleichung  $\sinh^2(\tau_0) - \left(\cosh \tau_0 - \frac{\sinh \tau_0}{\tau_0}\right) = \gamma^2$  berechnet [35; 45]. Die transversale Anfangsimpulsverteilung nach dem Tunneln ist in beiden Theorien, der adiabatischen und der nichtadiabatischen, gaußförmig. Während im adiabatischen Fall die Anfangsimpulsverteilung um Null zentriert ist, folgt aufgrund der oben genannten Effekte für die nichtadiabatische Theorie, dass für eine Laserpolarisation mit einer Elliptizität  $\epsilon$  der transversale Anfangsimpuls den Wert  $p_{\perp} = \frac{E\epsilon}{\omega} \left(\frac{\sinh \tau_0}{\tau_0} - 1\right)^2$  annimmt [45]. Eine ausführlichere Diskussion der Folgen für die Interpretation von Ionisationsexperimenten mit elliptischer Laserpolarisation wird in Kap. 4.4.6.4 vorgenommen.

## 2.7 Klassische Bewegung des Elektrons im Laserfeld

Im semiklassischen Modell tunnelt das Elektron zum Zeitpunkt  $t_0$ , der sich aus den Ionisationsraten ergibt, aus dem Atom parallel zur instantanen Laserpolarisationsrichtung. Es erscheint mit einer Anfangsgeschwindigkeit  $\mathbf{v}_0$  am Ausgang des Tunnels  $\mathbf{r}_0$ , der den Startort der Trajektorie darstellt. Allerdings sollten Ansätze, nach der Tunnelionisation Elektronentrajektorien an diesem Punkt zu beginnen, zurückhaltend beurteilt werden, da die Wellenfunktion des Elektrons über eine erhebliche Ausdehnung verfügt.

Die einfachste Umsetzung des semiklassischen Modells, welches dann auch als „Simple-Man“-Modell bezeichnet wird, vernachlässigt nach dem Ionisationsprozess in der Bewegung des Elektrons im Laserfeld das Coulomb-Potential des Atoms [7]. Diese Approximation ist dadurch motiviert, dass das Laserfeld die Bewegung des Elektrons nach der Ionisation klar dominiert und die Oszillationsamplitude des Elektrons im Feld im Vergleich zur Ausdehnung des Atoms sehr groß ist [25]. Damit vereinfacht sich die Bewegungsgleichung zu

$$\frac{d}{dt}\mathbf{v}(t) = -\mathbf{E}(t). \quad (2.15)$$

Wenn die Anfangsbedingungen des Elektrons mit  $\mathbf{r}_0 = 0$  sowie  $\mathbf{v}_0 = 0$  approximiert werden, lautet die Lösung

$$\mathbf{v}(t) = -\int_{t_0}^t \mathbf{E}(t')dt' = \mathbf{A}(t) - \mathbf{A}(t_0). \quad (2.16)$$

Damit besteht der Impuls aus einem Summanden, der mit der Laserphase oszilliert und proportional zu dem instantanen Vektorpotential  $\mathbf{A}(t)$  ist, sowie einem konstanten Summand  $\mathbf{p} = -\mathbf{A}(t_0)$ , dem Driftimpuls, der gleichbedeutend ist mit dem Impuls, den das Elektron nach dem Ende des Laserpulses besitzt und mit dem es auf einen Detektor trifft. Diese Beziehung kann auch als Erhaltung des kanonischen Impulses  $\mathbf{p}_{\mathbf{c}}(t) = \mathbf{v}(t) - \mathbf{A}(t)$  aufgefasst werden. Mit  $\mathbf{p}_{\mathbf{c}}(t_0) = \mathbf{p}_{\mathbf{c}}(t)$  folgt aus  $\mathbf{A}(t \rightarrow \infty) = 0$  für den Impuls des Elektrons am Ende des Laserpulses  $\mathbf{p}(t \rightarrow \infty) = \mathbf{p}_D = -\mathbf{A}(t_0)$ .

Dieses Ergebnis enthält eine wichtige Erkenntnis. Der Driftimpuls des Elektrons ist proportional zum Vektorpotential zum Zeitpunkt der Ionisation  $t_0$ , während der Ionisationszeitpunkt durch die Ionisationsrate bestimmt wird, die von der elektrischen Feldstärke abhängt. Da die Ionisation sehr stark an den Extrema der Feldstärke, an denen  $\mathbf{A}(t)$  verschwindet, konzentriert ist, folgt für lineare Polarisation  $\mathbf{p}_D \approx 0$ . Wenn der maximale Impuls erreicht wird, erreicht die Ionisationsrate  $\Gamma$  ihr Minimum im Laserzyklus.

## 2.8 Moleküle in starken Laserfeldern

In diesem Kapitel werden einige wichtige theoretische Aspekte von Molekülen in starken Laserfeldern vorgestellt. Grundsätzlich ist die Dynamik von Molekülen, im Vergleich zu den im vorangegangenen Kapitel diskutierten Atomen, ungleich komplizierter. Die präzise Modellierung der Moleküldynamik in Laserfeldern ist aufgrund der großen Anzahl von interagierenden Teilchen eine große Herausforderung in der Physik. Eine einheitliche analytische oder exakte numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung für Moleküle in intensiven Laserfeldern ist selbst für einfachste Systeme ohne Approximationen nicht möglich. Neben der elektronischen Konfiguration müssen für Moleküle zusätzlich die Freiheitsgrade der relativen Bewegungen der Atomkerne beachtet werden. Effekte wie Vibrationen und Rotation des Moleküls können entscheidenden Einfluss auf die beobachtbare Dynamik nehmen.

### 2.8.1 Born-Oppenheimer-Näherung

Quantenmechanisch lässt sich ein Molekül durch die Schrödinger-Gleichung  $\hat{H}\Psi = E_M\Psi$  beschreiben [47]. Der feldfreie Hamiltonian für ein zweiatomiges Molekül mit  $N$  Elektronen ergibt sich aus den Coulomb-Wechselwirkungen aller Teilchen:

$$H_0 = \underbrace{\sum_{i=1}^N \left( \frac{\mathbf{p}_{e,i}^2}{2m} \right)}_{\text{Kin. Energie der Elektronen}} + \underbrace{\frac{\mathbf{p}_1^2}{2M_1} + \frac{\mathbf{p}_2^2}{2M_2}}_{\text{Kin. Energie der Kerne}} - \underbrace{\sum_{i=1}^N \left( \frac{Z_1}{|\mathbf{r}_{e,i} - \mathbf{R}_1|} + \frac{Z_2}{|\mathbf{r}_{e,i} - \mathbf{R}_2|} \right)}_{\text{Kern-Elektron-Anziehung}} \quad (2.17)$$

$$- \underbrace{\sum_{i>j} \left( \frac{1}{|\mathbf{r}_{e,i} - \mathbf{r}_{e,j}|} \right)}_{\text{Elektron-Elektron-Abstoßung}} + \underbrace{\frac{Z_1 Z_2}{|\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_2|}}_{\text{Kern-Kern-Abstoßung}}$$

Die Born-Oppenheimer-Näherung geht davon aus, dass die elektronische Dynamik von der nuklearen Bewegung entkoppelt werden kann, da die Masse der Kerne viel größer ist als die Masse der Elektronen, die sich entsprechend schnell bewegen und sich Änderungen der Molekülstruktur anpassen. Die Kerngeometrie dient als quasistatisches Gerüst für die Elektronen. Im Rahmen der Born-Oppenheimer-Näherung kann mit dem Kernabstand  $R = |\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_2|$  die Wellenfunktion des Moleküls  $\Psi(\mathbf{r}_i, \mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2) = \Psi_e(\mathbf{r}_i, \mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2) \cdot \Psi_N(\mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2)$  in ein Produkt aus elektronischer Wellenfunktion  $\Phi(\mathbf{r}_i, R)$  und Kernwellenfunktion  $\chi(R)$  aufgespalten werden. Dies bedeutet auch, dass die elektronischen, die Schwingungs- und Rotationsbeiträge für die Energieniveaus des Moleküls separiert behandelt werden können  $E_M = E_e + E_{vib} + E_{rot}$ .

Um die molekularen Eigenzustände  $E_m$  zu ermitteln, wird im Rahmen dieser Näherung die zeitunabhängige Schrödinger-Gleichung für eine feste Kerngeometrie gelöst. Die Kernbewegung wird damit in einem effektiven Potential betrachtet, welches aus der schnellen und damit gemittelten Elektron-Elektron- und Elektron-Kern-Wechselwirkung folgt. Es ergeben sich die Potentialflächen als Funktion des Kernabstandes  $R$ .

### 2.8.2 Schwingungen zweiatomiger Moleküle

Die Kerne führen Schwingungen in einem mittleren Potential aus, dass sich aus der gemittelten Bewegung der Elektronen ergibt [47; 48]. In erster Näherung kann dieses Potential um das

Minimum als harmonisches Potential beschrieben werden und es ergeben sich die Energieeigenwerte des harmonischen Oszillators

$$E_{vib}(v) = (v + \frac{1}{2})\hbar\omega_0 \quad (2.18)$$

mit der Schwingungsquantenzahl  $v$  und der Energieseparation  $\Delta E = \hbar\omega_0$ . Die Eigenfrequenz  $\omega_0 = \sqrt{\frac{k_r}{\mu}}$  hängt von der Form des Potentials und der reduzierten Masse  $\mu$  des Moleküls ab. Die für die Geschwindigkeit der Schwingung entscheidende Größe ist damit die reduzierte Masse des Moleküls  $\frac{1}{\mu_r} = \frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2}$  bzw.  $\mu_r = \frac{M_1 M_2}{M_1 + M_2}$ . Mit den Hermite-Polynomen  $H_v$  haben die entsprechenden Eigenfunktionen die Form  $\psi_{vib}(R) = \exp(-\pi\mu\omega/hR) \cdot H_v(R)$ , wobei die Auswahlregeln für Dipolübergänge  $\Delta v = \pm 1$  lautet.

Ein harmonisches Potential stellt nur für geringe Auslenkungen in der Nähe des Potentialminimums bei  $R_e$  eine gute Beschreibung von Molekülen dar. Eine bessere Approximation bietet das Morse-Potential  $V(r) = E_d[1 - e^{-a(R-R_e)}]^2$ . Dabei ist  $E_D$  die Dissoziationsenergie des Moleküls und entspricht der Potentialtiefe. Die Eigenwerte sind dann durch

$$E_{vib}(v) = (v + \frac{1}{2})\hbar\omega_0 - \frac{\hbar^2\omega_0^2}{4E_D}(v + \frac{1}{2})^2 \quad (2.19)$$

mit der Frequenz  $\omega_0 = a\sqrt{\frac{2E_D}{\mu}}$  gegeben. Die Auswahlregeln  $\Delta v = \pm 1$  gelten nicht mehr so streng wie bei dem harmonischen Oszillator, so dass auch Übergänge mit  $\Delta v = \pm 2, 3, \dots$  möglich sind. Die Energieseparation beträgt  $\Delta E(v) = \hbar\omega_0 \left[1 - \frac{\hbar\omega_0}{2E_D}(v + \frac{1}{2})\right]$ , sodass die Energiedifferenz zwischen benachbarten Zuständen nicht mehr konstant ist und für eine wachsende Quantenzahl  $v$  abnimmt. Die Energieabstände liegen typischerweise im Infrarotbereich. Mit steigendem  $v$  wächst auch der mittlere Kernabstand der Zustände.

### 2.8.3 Rotation zweiatomiger Moleküle

Ein weiterer für Moleküle relevanter Freiheitsgrad ist die Rotation. Da die Rotation eines Moleküls im Vergleich zu Schwingungen deutlich langsamer stattfindet, kann in guter Näherung von einem festen mittleren Kernabstand ausgegangen werden [49]. In diesem Fall ist die Beschreibung der Rotation eines Moleküls durch einen starren Rotator möglich.

Das Trägheitsmoment des Moleküls bezüglich seiner Rotationsachse beträgt  $I = M_1 R_1^2 + M_2 R_2^2 = \mu R^2$ , sodass für die Rotationsenergie  $E_{rot} = \frac{1}{2}I\omega^2$  folgt. Quantenmechanisch ergeben sich die Energieniveaus der Rotation

$$E_{rot} = \frac{J(J+1)\hbar^2}{2\mu R^2} \quad (2.20)$$

mit der Rotationsquantenzahl  $J$ . Die Energieabstände liegen typischerweise im Mikrowellenbereich.

Im thermischen Gleichgewicht kann die Besetzungsdichte der Energiezustände mit einer Boltzmann-Statistik beschrieben werden und ist daher proportional zu  $(2J+1)e^{-\frac{\hbar^2 J(J+1)}{2I k_b T}}$ , wobei  $k_b$  die Boltzmann-Konstante und  $T$  die Temperatur bezeichnen.

### 2.8.4 Laserinduzierte Fragmentation von Molekülen

Um die Komplexität der laserinduzierten Fragmentation von Molekülen in starken Laserfeldern erklären zu können, wurden eine Reihe von Mechanismen identifiziert, die typischerweise

im Zusammenhang zur Dissoziation und Ionisation des Wasserstoffmoleküls  $\text{H}_2^+$ , dem einfachsten aller Moleküle, diskutiert werden [50; 51].

Für den Vorgang der Dissoziation von  $\text{H}_2^+$  ist die elektronische Anregung auf einen dissoziierenden Zustand durch Absorption von einem oder mehreren Photonen entscheidend und als Above-Threshold-Dissociation bekannt (siehe Abb. 2.3 (a)) [21]. Kommt es nach dieser Anregung zu Übergängen zurück auf den bindenden Zustand, wird entsprechend die Emission von Fragmenten mit geringer Energie beobachtet und als Zero-Photon-Dissociation interpretiert [52].

Zusätzlich führt die Kopplung der elektronischen Zustände in  $\text{H}_2^+$  durch das Laserfeld zu einer Verformung der Potentiale, sodass eine scheinbare Abschwächung der Molekülbindung die Dissoziation von bestimmten Vibrationszuständen erhöht, die als Bond-Softening bezeichnet wird [22]. Umgekehrt kann für andere Vibrationszustände eine Stabilisierung der Bindung und entsprechende Verringerung der Dissoziationswahrscheinlichkeit, also Bond-Hardening, auftreten [53].

Wie es für die Atome beschrieben wurde, können Laserfelder abhängig von ihrer Intensität die gebundenen Elektronen eines Moleküls herauslösen (siehe Abb. 2.3 (b)). Erfolgt die Ionisation, nachdem das Molekül zuvor in einen dissoziierenden Zustand angeregt wurde, über einen großen Bereich von internuklearen Abständen  $R$ , wird der Begriff der dissoziativen Ionisation verwendet [54].

Überwiegt infolge des Entfernens der Elektronen die Coulomb-Abstoßung der positiven Ladungen, zerfällt das Molekül in Kationen. Die in dieser Coulomb-Explosion auf die nuklearen Fragmente übertragene kinetische Energie gibt Auskunft über den Abstand der Atome zum Zeitpunkt der Ionisation [55].

Für  $\text{H}_2^+$  beschreibt der Effekt der Charge-Resonant-Enhanced-Ionization (CREI), dass an bestimmten internuklearen Abständen  $R$  als Folge des Übergangs in den angeregten elektronischen Zustand eine Erhöhung der Ionisationswahrscheinlichkeit auftritt [56].

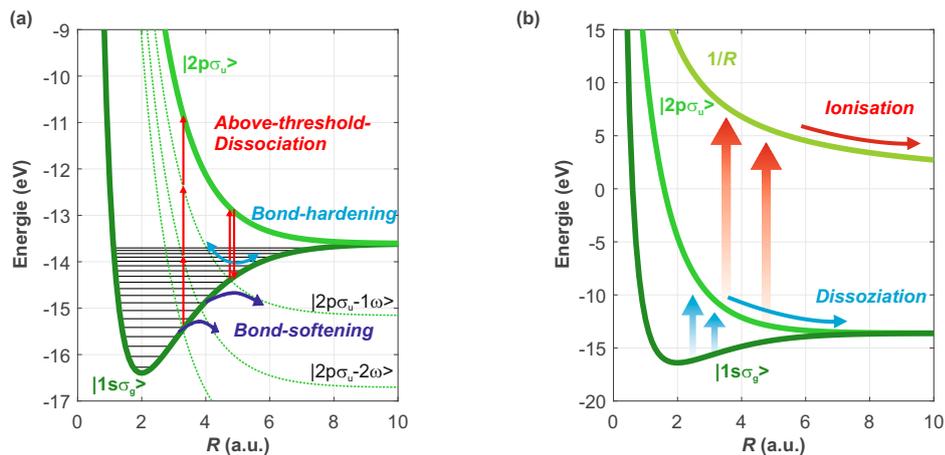


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Fragmentation des  $\text{H}_2^+$ -Moleküls: (a) Born-Oppenheimer-Potentialflächen für den Grundzustand  $1s\sigma_g$  mit den Vibrationszuständen und dem angeregten Zustand  $2p\sigma_u$ . Auch eingezeichnet ist der um die Energien von 800 nm-Photonen verschobene  $2p\sigma_u$  mit den relevanten Mechanismen für die Dissoziation ( $\text{H}_2^+ \rightarrow \text{H} + \text{H}^+$ ), (b) Born-Oppenheimer-Potentialflächen für  $1s\sigma_g$ ,  $2p\sigma_u$  und das repulsive  $1/R$ -Potential für die Ionisation ( $\text{H}_2^+ \rightarrow \text{H}^+ + \text{H}^+ + e^-$ ).

## Kapitel 3

# Impulsspektroskopie von atomaren und molekularen Ionen

*Der in dieser Arbeit genutzte Ionenstrahlapparat erlaubt die Impulsspektroskopie der ionischen und neutralen Fragmente nach Laserinteraktion von atomaren Ionen und Molekülionen. Die nuklearen Fragmente können in Koinzidenz detektiert und somit ihre Impulse aus der Flugzeit und dem Auftreffort auf dem Detektor rekonstruiert werden. Die Erzeugung von Ionen in einer Ionenquelle ermöglicht den Zugang zu fundamentalen Systemen wie  $\text{He}^+$  (siehe Kap. 4) und  $\text{H}_2^+$  [12] sowie exotischen Molekülen wie  $\text{HeH}^+$  (siehe Kap. 6).*

### 3.1 Einleitung

In diesem Kapitel wird die in dieser Arbeit genutzte Technik vorgestellt, die für die impuls aufgelösten Untersuchungen der Interaktion von Ionen und ionischen Molekülen mit einem intensiven Laserfeld verwendet wird. Während sehr viele Starkfeldexperimente mit neutralen Atomen oder Molekülen in der Literatur zu finden sind, gibt es nur eine überschaubare Anzahl von vergleichbaren Experimenten mit Ionen oder geladenen Molekülen.

Frühe Untersuchungen von geladenen Molekülen wie für  $\text{H}_2^+$  und  $\text{Ar}_2^+$  mit intensiven Laserpulsen wurden von Figger, Hänsch *et al.* in München [57; 58] und von Williams *et al.* in Großbritannien [59] durchgeführt. Später gab es auch in anderen Arbeitsgruppen weitere Experimente mit ionischen Molekülen [60; 61; 62; 63; 64] und für positive und auch negative atomare Ionen [65; 66; 67].

In den letzten Jahren wurde im Labor der Arbeitsgruppe Nichtlineare Optik in Jena eine Ionenstrahlapparatur für die Untersuchung von ionischen Targets mit Few-Cycle-Laserpulsen [12] und Laserpulsen mit hohen Intensitäten in Betrieb genommen [68]. Die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente (siehe Kap. 4, Kap. 5.2 und Kap. 6) basieren auf der Nutzung und Weiterentwicklung dieses Aufbaus.

Mit dieser Ionenstrahlapparatur können die Impulsverteilungen der ionischen und neutralen Fragmente gemessen werden, die in der Photoionisation oder Photodissoziation von Ionen oder geladenen Molekülen im Feld eines intensiven Laserpulses entstehen. Die zeit- und positions aufgelöste Koinzidenzdetektion erlaubt die Rekonstruktion des vollen dreidimensionalen Impulses aller nuklearen Fragmente. Schwache elektrostatische transversale und longitudinale Felder ermöglichen die Separation verschiedener Ladungszustände in der Flugzeit und dem

detektierten Auftreffort. Damit können neben dem Ladungszustand auch der Impuls der Ionen, und bei der Fragmentation von Molekülen der Kinetic-Energy-Release (KER) sowie die Ausrichtung ermittelt werden.

Der experimentelle Aufbau der Ionenstrahlanlage besteht aus folgenden Abschnitten:

1. Erzeugung und Präparation eines Ionenstrahls aus einer Ionenquelle
2. Bereitstellung und Fokussierung intensiver Laserpulse
3. Interaktion von Ionenstrahl und fokussierten Laserpulsen
4. Detektion der ionischen und neutralen Fragmente mit einem zeit- und positionsempfindlichen Detektor.

Eine schematische Abbildung der verschiedenen Elemente ist in Abb. 3.1 dargestellt.

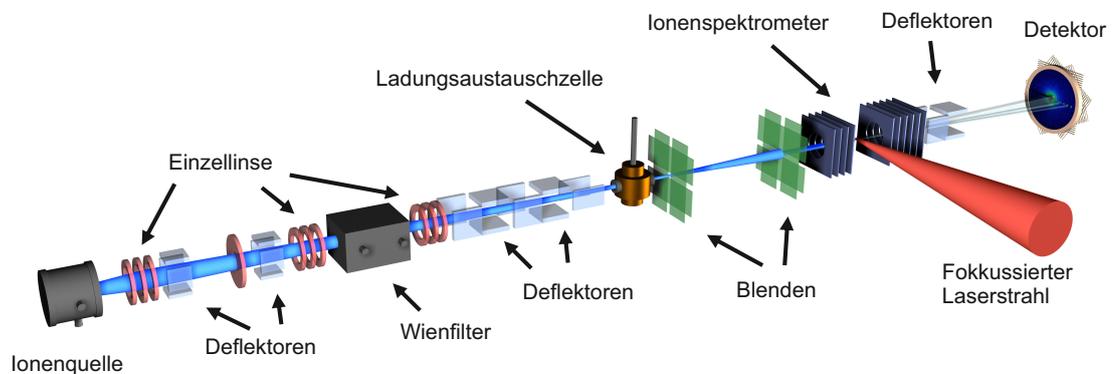


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau des Ionenstrahlapparates zur Impulsspektroskopie von atomaren und molekularen Ionen.

## 3.2 Erzeugung eines Ionenstrahls

Zur Erzeugung des Ionenstrahles kommt eine Duoplasmatron-Ionenquelle zum Einsatz [69; 70]. Im Duoplasmatron können Ionenströme von atomaren Ionen von Edelgasen und molekulare Ionen wie  $\text{H}_2^+$ ,  $\text{HD}^+$ ,  $\text{HeH}^+$  [13] oder  $\text{Ar}_2^+$  [71] erzeugt werden.

Ein Potential von ca. 300 V zwischen einer Hohlkathode und einer Anode ionisiert das Gas in der Ionenquelle (siehe Abb. 3.2 (a)). Das in dieser Hohlkathodenentladung ausgebildete Plasma wird durch das elektrische Feld einer Zwischenelektrode und das magnetische Feld eines Elektromagneten komprimiert [72; 73]. Die Anordnung und Wahl der Materialien (Zwischenelektrode aus Weicheisen) ist wichtig für die Stärke des Magnetfeldes (bis zu 0,7 T), welches die Aufgabe hat, das Plasma auf die Emissionsöffnung zur Extraktion der Ionen in der Anode zu fokussieren.

Die Beschleunigung von Elektronen und Ionen in der Hohlkathodenanordnung führt zu einer starken Abnutzung der Elektroden. Das dabei frei werdende Material kann sich ablagern und zur Blockade der Extraktionsöffnung führen. Für die Anode und die Hohlkathode hat sich daher Wolfram als langlebigstes Material herausgestellt. Über eine Potentialdifferenz von 5-10 kV zur Extraktionselektrode hinter der Anode wird aus dem Plasma ein kontinuierlicher Ionenstrom durch eine Emissionsapertur in der Anode (150 - 300  $\mu\text{m}$ ) extrahiert.

Der Druck in der Ionenquelle muss zum Zünden der Hohlkathodenentladung auf ca.  $10^{-1}$  mbar erhöht werden. Nach dem Start der Entladung wird nur ein geringer Ionenstrom emittiert. Erst durch Absenken der Gaszufuhr wird das Plasma der Gasentladung in Richtung der Emissionsöffnung verschoben und es können höhere Ionenströme extrahiert werden [69]. Je niedriger der Druck, desto höher wird der extrahierbare Ionenstrom, aber umso größer ist die Wahrscheinlichkeit für Überschläge in der Entladungskammer. Vor allem nach der Startphase treten häufiger Überschläge auf, die auch zum Abbruch der Entladung führen können. Um ein Ionisationsexperiment zu starten, muss ein stabiler Zustand der Ionenquelle erreicht werden, der sich nach etwa 10 Stunden einstellt. Im Betrieb reduziert sich der Druck in der Duoplasmatron-Ionenquelle nach einer Startphase auf ca.  $10^{-2}$  mbar. In der Kammer nach der Extraktion der Ionen aus der Hohlkathodenentladung herrscht aufgrund einer differentiellen Pumpstufe ein Druck von ca.  $10^{-7}$  mbar.

Nach der Extraktion wird der Ionenstrahl durch ein System von drei elektrostatischen Einzel-linsen kollimiert, um einen Ionenstrahl geringer Divergenz und hoher Ionendichte zu formen (siehe Abb. 3.2 (b)). Die Positionierung des Ionenstrahls geschieht über drei, an unterschiedlichen Positionen in der Anlage befindlichen Systemen von elektrostatischen Deflektoren, die aus jeweils zwei senkrecht zueinander ausgerichteten Paaren von Deflektorplatten bestehen.

Die verschiedenen von der Quelle erzeugten Ionenspezies und Ladungszustände werden mit Hilfe eines Wienfilters (Dreerbit: Massen und Ladungsauflösung  $>20$  bei 5 kV) mit einer Apertur von 1 mm selektiert. Um einen transversal kalten Ionenstrom homogener Dichte zu erhalten, dienen zwei Blendensysteme aus jeweils vier verschiebbaren Platten. Der Abstand der beiden Blendensysteme beträgt 132 cm. Mit Hilfe der Blenden kann die Strahlform sowie -durchmesser eingestellt werden. Zur korrekten Positionierung des Ionenstrahls wird die Abbildung des Ionenstrahls auf einen Phosphorschirm genutzt.

Die gesamte Ionenstrahlanlage besteht aus mehreren differentiell gepumpten Ultrahochvakuumkammern. Jede Kammer wird durch ölfreie, magnetisch gelagerte Turbopumpen gepumpt und zusätzlich gegebenenfalls bei  $120^\circ\text{C}$  ausgeheizt. In der Ionenquelle ist der Druck vergleichsweise hoch und muss auf ein sehr gutes UHV von  $10^{-10}$  mbar in der Detektorkammer abgesenkt werden, um das Hintergrundsignal auf dem Detektor zu reduzieren. Dies entsteht durch laserinduzierte Ionisation der Gasteilchen im Vakuum, welches bei  $10^{-10}$  mbar eine Teilchendichte von ungefähr  $10^5\text{ cm}^{-3}$  aufweist. Im Vergleich zu dem Ionenstrahl ( $\approx 10^5\text{ cm}^{-3}$ ) hat das Hintergrundgas damit die gleiche oder, abhängig von der Ionenspezies, sogar eine höhere Teilchendichte als der Ionenstrahl, dem eigentlichen Target des Experimentes (siehe Kap. 3.6).

Durch Kollision der schnellen Ionen des Ionenstrahls mit Restgasatomen wird über Elektreneinfangprozesse der geladenen Ionen ein neutraler Atomstrahl erzeugt. Um diesen Effekt zu minimieren, muss das Aufkommen von Restgasatomen auf der gesamten Flugstrecke des Ionenstrahls reduziert werden. Jedoch kann dieser Neutralisationsprozess durch den Einbau einer Ladungsaustauschzelle in die Ionenstrahlapparatur (siehe Abb. 3.2) gezielt verstärkt werden, sodass ein Strahl neutraler Atome mit ausreichender Dichte entsteht, um die Interaktion von neutralen Teilchen mit Laserstrahlung zu untersuchen (siehe Kap. 5.2.2).

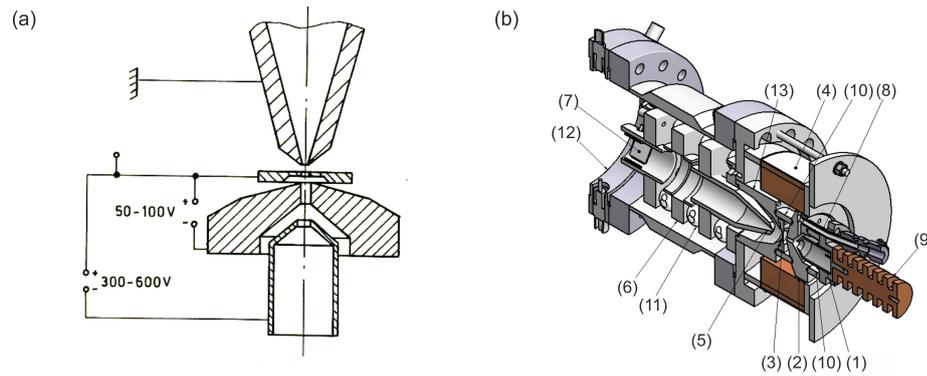


Abbildung 3.2: Duoplasmatron-Ionenquelle: (a) Anordnung der Elektroden: Zwischen Hohlkathode und Anode wird eine Potentialdifferenz von 300 V angelegt. Die Zwischenelektrode erzeugt ein zusätzliches elektrostatisches Feld zur Kompression des Plasmas. Die Extraktions- und Anode liegt auf Erdpotential (Abb. aus [74]), (b) Schematischer Aufbau der genutzten Ionenquelle: Hohlkathode(1), Zwischenelektrode(2), Anode(3), Elektromagnet(4), Extraktions- und Anode(5), Einzellinse(6), Deflektoren(7), Gaseinlass(8), Kühlkörper aus Kupfer(9), Keramikelemente(10), Keramikkugeln(11), Flansch mit elektrischen Durchführungen(12) und Flansch zur Halterung der Entladungskammer(13).

### 3.3 Laser und Laseroptik

Für die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente wurden die Laserpulse des Thales-Lasersystems verwendet (siehe Anhang 8.3.1). Zur Fokussierung des Laserstrahls in die Interaktionskammer kam eine 90°-off-axis-Parabel mit einer effektiven Fokusslänge von 150 mm zum Einsatz. Die Fokusgröße und -form wurden mit einer Kamera untersucht, auf die der Laserfokus mit Hilfe eines Klappspiegels abgebildet wurde. Der minimal erreichbare Strahldurchmesser beträgt ca.  $10 \pm 2 \mu\text{m}$ . Verluste an Transmissions- und Reflexionsoptiken tragen zur Verminderung der Pulsenergie bei, die für die Laserwechselwirkung im Target zur Verfügung steht. Für 800 nm können Spitzenintensitäten von bis zu  $\approx 1 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$  erreicht werden.

Eine wichtige Messung für Starkfeldexperimente ist die Charakterisierung der Intensitätsabhängigkeit der untersuchten Prozesse. Dabei ist eine kontinuierliche Veränderung der Intensität ohne Veränderung anderer Parameter wie Pulsdauer oder Spektrum nötig. Dies kann durch eine Abschwächung der Pulsenergie erreicht werden, indem z.B. eine Halbwellenplatte vor einem breitbandigen Polarisator rotiert wird. Eine andere Möglichkeit besteht darin, die Position des Laserfokus relativ zur Position des Targets zu verändern [75]. Diese Methode hat den Vorteil, dass für geringere Intensitäten das aktive Volumen der Laser-Materie-Wechselwirkung erhöht wird und damit im Vergleich zu anderen Methoden höhere Zählraten bei niedrigen Intensitäten erreicht werden.

### 3.4 Interaktionszone und Strahlüberlagerung

In der Interaktionszone kreuzen sich Ionen- und Laserstrahl genau senkrecht zueinander. Die Überlagerung des Laserfokus mit einem Durchmesser von etwa  $10 \mu\text{m}$  mit dem Ionenstrahl, der etwa eine Querschnittsfläche von circa  $0,16 \text{ mm}^2$  aufweist, erfordert eine präzise Ausrichtung beider Strahlen sowie eine Möglichkeit, ihre Position zueinander im Raum zu bestimmen.

Um die Überlagerung zu gewährleisten, werden beide Strahlen auf eine Metallspitze, die in die Interaktionskammer gefahren wird, ausgerichtet [76]. Gelingt gleichermaßen die Abbildung der Spitze mit dem Ionenstrahl, beobachtbar auf dem Phosphorschirm, und die Abbildung der Spitze mit dem Licht des Laserstrahls, dann stimmen die Positionen der beiden Strahlen hinreichend überein, um die Überlagerung über die Zählrate ionisierter Partikel weiter zu optimieren. Dazu wird der Fokus über die mögliche Ausdehnung des Ionenstrahls automatisiert verfahren und die detektierte Rate ausgewertet.

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

Die Interaktion von Laserpuls und Ionen findet in einem longitudinalen elektrostatischen Feld eines Spektrometers statt (siehe Abb. 3.3) [77]. Es ermöglicht, die Ionen in Abhängigkeit der Ladungsänderung, die die Ionen in der Laserinteraktion erfahren haben, in der Zeit zu separieren. Das Spektrometer besteht aus mehreren durch Widerstände verbundenen ringförmigen Edelstahlplatten, die senkrecht zum Ionenstrahl ausgerichtet sind. Die beiden Ringe am Eingang und Ausgang liegen auf Erdpotential, während an die Ringe, die die Interaktionszone begrenzen, eine Spannung von  $U_s = 100\text{ V} - 300\text{ V}$  angelegt ist.

Das durch die angelegte Spannung erzeugte longitudinale Feld beschleunigt die in das Spektrometer eintreffenden Ionen der Ladung  $q$  bis zum Interaktionspunkt um  $qU_s$ . Nicht vom Laserfeld ionisierte Ionen werden bei ihrem Weg von der Interaktionszone zum Spektrometerausgang wieder um denselben Betrag der Potentialdifferenz  $qU_s$  abgebremst. Erfahren die Ionen jedoch eine Änderung des Ladungszustandes oder der Masse durch Photoionisation oder Molekülfragmentation, werden sie beim Verlassen des Spektrometers stärker abgebremst als sie zuvor beim Eindringen beschleunigt wurden. Die Geschwindigkeitsänderung und die Flugzeitänderung relativ zu den nicht ionisierten Ionen ist abhängig von der Ladungsänderung sowie der Masse des Fragments. Damit können die verschiedenen, durch den Ionisationsprozess im Laserfeld erzeugten Ladungszustände durch ihre Flugzeit identifiziert werden.

Zusätzlich zur zeitlichen Separation durch das Spektrometer wird ebenfalls zur Separation verschiedener Fragmente eine Aufspaltung der Ladungszustände durch schwache transversale elektrostatische Felder in vertikaler und horizontaler Richtung nach dem Spektrometer verwendet (siehe Abb. 3.3). Das transversale Feld sorgt dafür, dass Fragmente mit unterschiedlichen Ladungsmasseverhältnissen an verschiedenen Positionen auf den Detektor treffen.

Der gekoppelte Einfluss der longitudinalen und transversalen Felder auf die gemessenen Impulsänderungen muss in der Auswertung bei der Rekonstruktion der Impulse der Fragmente aus den gemessenen Orten und Flugzeiten beachtet werden. Dies wird durch eine Simulation der Ionentrajektorien in SIMION entsprechend der jeweils verwendeten Parameter und Geometrie sichergestellt, die für eine Korrektur in der Rekonstruktion der Fragmentimpulse genutzt wird.

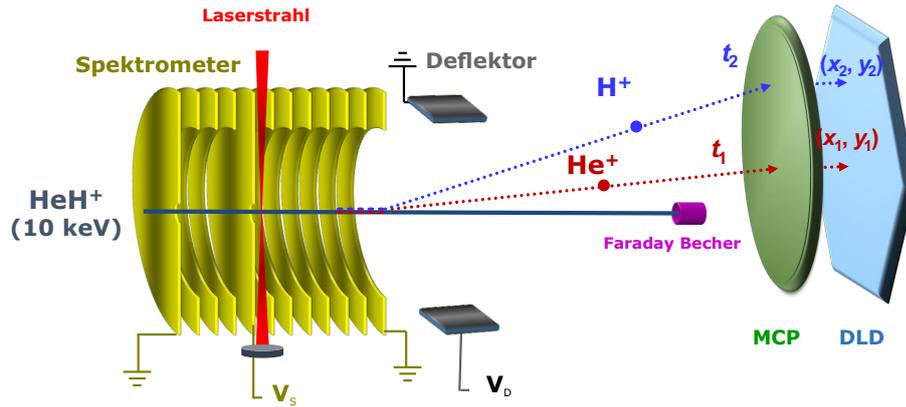


Abbildung 3.3: Schema der Messung am Ionenstrahlapparat über longitudinale und transversale Felder zur Separation verschiedener Fragmente. Unterschiedlich schwere Fragmente, z.B. ein Proton und ein Heliumion, werden an unterschiedlichen Positionen und zu verschiedenen Flugzeiten detektiert. Der Ionenstrahl wird mit einem Faraday-Becher aufgefangen (Abb. verändert nach [77]).

### 3.5 Detektorsystem und Auswertung

Zur Messung der Ionen nach der Interaktion mit dem Laser wird ein positions- und zeitauflösender Teilchendetektor bestehend aus einer Mikrokanalplatte (MCP) und einer Delayline-Anode (Roentdek-Anode DLD80X) verwendet (siehe Abb. 3.3). Die aktive Detektorfläche hat einen Durchmesser von 80 mm. Die Ankunftszeit und Position jedes auf dem Detektor auftreffenden Teilchens wird in Koinzidenz mit dem Triggersignal des Laserpulses registriert und digitalisiert. Der Delayline-Detektor erlaubt die simultane Positionsrekonstruktion von zwei Ereignissen, auch wenn sie zeitlich nur durch einen Abstand von 1 ns getrennt sind.

Die Spannungssignale der MCP und des Delayline-Detektors werden mit einem Analog-Digital-Umsetzer der Firma Roentdek [78] (2-8 Kanäle mit je 8 bit und einer Datenrate zwischen 1,25 GS/s und 5 GS/s) digitalisiert und über USB ausgelesen. Die Aufnahme und die ersten Auswertungsschritte der Messdaten erfolgen mit der Software „Cobold“ von Roentdek. Die Daten werden exportiert und in Matlab weiter ausgewertet. Es werden zeitliche und räumliche Filter zur Selektion der realen Ereignisse aus dem Untergrundrauschsignal sowie zur Unterscheidung der verschiedenen Ladungszustände eingesetzt. Aus der Flugzeit und der Auftreffposition auf dem Detektor erfolgt die Berechnung der drei Impulskomponenten jedes detektierten Teilchens.

Der Abstand zwischen Ionen-Laser-Interaktion und Detektor wird so gewählt, dass die Auftreffpunkte der zu messenden Fragmente einerseits eine möglichst große Ausdehnung auf dem Detektor einnehmen und andererseits keine Fragmente den Detektor verfehlen. Daher wird die Länge der Flugstrecke entsprechend der Impulse der Fragmente nach der Laserinteraktion sowie der Masse und Beschleunigungsspannung der Ionen gewählt.

Die Impuls- und Energieauflösung der Messung hängt von vielen Parametern ab. Dazu gehören wie schon erwähnt die Geschwindigkeit und Masse der Fragmente, die Beschleunigungsspannung, die transversale und longitudinale Anfangsgeschwindigkeitsverteilung der Ionen, der Abstand zwischen Interaktionskammer und Detektor sowie die Auflösung des Detektors (siehe auch [63; 76; 79]). Das Detektorsystem kann eine räumliche Auflösung von unter 100  $\mu\text{m}$

und eine zeitliche Auflösung von unter 100 ps erreichen.

Der primäre Ionenstrahl wird mit einem Faraday-Cup mit einem Durchmesser von 2 mm vor dem Detektor aufgefangen (siehe Abb. 3.3), um eine Überlastung des Detektors zu verhindern. Nur die ionisierten Ionen treffen aufgrund der transversalen Ablenkung den Detektor.

### 3.6 Targetdichte und Zählraten

Die Ionenstrahldichte  $\rho$  kann abgeschätzt werden mit

$$\rho = \frac{I}{Aq} \sqrt{\frac{m}{2qU_{acc}}}, \quad (3.1)$$

wobei  $A$  die Ionenstrahlquerschnittsfläche,  $I$  den Ionenstrom,  $U_{acc}$  die Beschleunigungsspannung,  $m$  die Masse und  $q$  den Ladungszustand der Ionen bezeichnen. Für typische Experimente sind die Werte  $A \approx 0.25 \text{ mm}^2$ ,  $I \approx 2 \text{ nA}$  und es ergibt sich  $\rho \approx 2 \cdot 10^5 \text{ Atome/cm}^3$ . Die Targetdichte ist limitiert durch die Emissionscharakteristik der Ionenquelle und die für die Fokussierung verwendete Ionenoptik. Raumladungseffekte auf Grund von Coulomb-Wechselwirkung werden erst für deutlich höhere Targetdichten von Bedeutung.

Die Zählrate realer Ereignisse ist aufgrund der geringen Ionendichte sehr klein und liegt in der Größenordnung von 0,01–10 Hz bzw.  $10^{-5}$ – $10^{-2}$  pro Laserpuls. Dies limitiert die Statistik, die in Experimenten eines Ionenstrahls in der Interaktion mit Laserpulsen erreicht werden kann. Die Dauer einer einzelnen Messung beträgt daher ein bis mehrere Tage und stellt sehr hohe Anforderungen an die Stabilität der Ionenquelle und des Lasersystems.

Die geringe Dichte erfordert eine aufwendige Justage und Optimierung für jedes Experiment. Wichtig ist die Bestimmung der Überlagerung von Laserfokus und Ionenstrahl, wobei die Position des Laserfokus automatisiert variiert und die Zählrate ausgewertet wird. Aufgrund der Ereignisraten sind allein für diese Optimierung mehrere Stunden notwendig.

Es wurden verschiedene Möglichkeiten getestet, wie die Dichte des Ionenstrahls erhöht werden kann, z.B. durch Pulsen der Entladungs- oder Extraktionsspannung der Ionenquelle. Es gelang jedoch nicht höhere Ionenströme zu erzeugen, die auch die benötigte Strahlqualität zur Kollimierung der Ionen und eine gute zeitliche Stabilität besitzen.

Diese für Ionenstrahlen erreichbaren Targetdichten stehen in starkem Kontrast zu den Dichten, die für neutrale Atome oder Moleküle in Gasphase realisiert werden können. Darauf beruht die überwiegende Mehrheit der Starkfeldexperimente, die andere Techniken zur Impulsspektroskopie wie Velocity-Map-Imaging [80] oder Cold Target Ion Recoil Mass Spectroscopy (COLTRIMS) [81; 82] einsetzen. Mit den dabei verwendeten Gasjet lassen sich um Größenordnungen höhere Targetdichten generieren, bis zu  $3 \cdot 10^{11} \text{ Atome/cm}^2$  [81].

### 3.7 Vergleich mit anderen Techniken

Eine wichtige Technik zur Messung der Fragmentimpulse nach Starkfeldionisation von neutralen Atomen [83; 84; 85] oder Molekülen [86; 87] ist Cold Target Ion Recoil Mass Spectroscopy (COLTRIMS) [81; 82]. Ergebnisse einer COLTRIMS-Messung werden auch in Kap. 5.3 dieser Arbeit diskutiert.

In einem COLTRIMS-Experiment können Atome oder Moleküle aus einem kalten Gasjet von einem Laserpuls ionisiert werden. Elektrische und magnetische Felder lenken die Fragmente,

die freigesetzten Elektronen sowie die Ionen, zu zwei gegenüberliegenden Detektoren, die eine Koinzidenzdetektion der Fragmente ermöglichen. Aus den Flugzeiten und dem Auftreffpunkten lassen sich die Richtungen und Geschwindigkeiten der Teilchen bestimmen [82].

COLTRIMS hat einige Gemeinsamkeiten mit der hier beschriebenen Methode zur Impulsspektroskopie an der Ionenstrahlapparatur. So kommt der gleiche zeit- und ortsempfindliche Detektor zum Einsatz, der eine Koinzidenzdetektion verschiedener Fragmente erlaubt. Um sicherzustellen, dass die in Koinzidenz detektierten Fragmente aus demselben Molekül oder Atom stammen, muss die Anzahl der Ereignisse pro Laserpuls in der Größenordnung von eins gehalten werden. Dies wird im Falle eines ionischen Targets bereits durch die Ionenstrahldichte gewährleistet (siehe Kap. 3.6).

Offensichtlicher Unterschied zwischen beiden Techniken ist die Beschaffenheit des Targets. Für COLTRIMS sind die zu untersuchenden Systeme auf neutrale bzw. gasförmige Atome oder Moleküle beschränkt, während mit dem Ionenstrahl Aufbau nur Ionen oder durch Neutralisation von Ionen gewonnene Atome oder Moleküle untersucht werden können (siehe Kap. 5.2). Aus den unterschiedlichen Targets leitet sich ein wesentlicher Unterschied für die erreichbaren Targetdichten ab, wie in dem vorangegangenen Kapitel diskutiert wurde.

Für die Untersuchung von Molekülionen ergibt sich eine wesentliche Besonderheit bei der Nutzung eines Ionenstrahls. Die Verteilung der Vibrationszustände des Moleküls in der Wechselwirkung mit dem Laserpuls bleibt aufgrund der Flugzeit von einigen Mikrosekunden nach der Erzeugung in der Ionenquelle erhalten, allerdings sind die Vibrationszustände untereinander nicht kohärent. Dies ist ein wichtiger Unterschied zu dem Fall, dass das Molekülion, z.B.  $\text{H}_2^+$ , über Ionisation des neutralen Moleküls aus der Gasphase in demselben Laserpuls, der danach die Fragmentation untersucht, erzeugt wird.

Weitere Unterschiede treten in der Detektion der Fragmente auf. Im Gegensatz zu Experimenten mit COLTRIMS können mit dem Ionenstrahl nicht nur die ionischen, sondern aufgrund der hohen Anfangsgeschwindigkeit des Ionenstrahls auch die neutralen Fragmente detektiert werden. Dies ermöglicht für die Untersuchung von Molekülreaktionen, wie z.B. der Fragmentation von  $\text{H}_2^+$  [12], die Unterscheidung verschiedener Zerfallskanäle.

Andererseits können mit dem in dieser Arbeit genutzten Ionenstrahl Aufbau nicht die Elektronen nach der laserinduzierten Ionisation gemessen werden, wie es aufgrund der speziellen Anordnung von zwei Detektoren für COLTRIMS der Fall ist.

Im Prinzip ist auch für Ionenstrahlen die Detektion der Ionen und Elektronen in Koinzidenz möglich, wie von Odenweller *et al.* [64] demonstriert wurde. Wenn die Informationen von drei verschiedenen Delayline-Detektoren kombiniert werden, kann mit einem Ionenstrahl Aufbau die gleiche Information aufgenommen werden, wie sie für die Ionisation von neutralen Atome in COLTRIMS-Experimenten zur Verfügung steht.

Da Ionen- und Elektronenimpulsspektren aufgrund der Impulserhaltung den fast identischen Informationsgehalt [88] aufweisen, kann die Messung der Ionen ausreichen, um den Ionisationsprozess zu untersuchen. Im Fall der sequentiellen Mehrfachionisation ist es möglich, den Impuls der Elektronen, die in den Einzelionisationschritten emittiert wurden, zu rekonstruieren [68].

## Kapitel 4

# Das $\text{He}^+$ -Ion in starken Laserfeldern: Das adiabatische Limit der Tunnelionisation

*Um ein besseres Verständnis des quantenmechanischen Tunnelprozesses zu erlangen und insbesondere die Frage nach einer Tunnelzeit zu klären, wurden in dieser Arbeit Experimente zur Ionisation des einfach geladenen Heliumions mit der Attoclock-Methode durchgeführt. Die Nutzung des  $\text{He}^+$ -Ions ermöglicht es, die Tunnelionisation an einem Einelektronensystem und näher am Idealfall des quasistatischen Tunnelregimes zu untersuchen, welches durch einen geringen Keldysh-Parameter charakterisiert wird.*

### 4.1 Über das Verständnis des Tunneleffekts

Der Tunneleffekt ist einer der grundlegendsten Phänomene der Quantenmechanik und wurde in den 1920er Jahren erstmals beschrieben [89]. Er bezeichnet die Fähigkeit von quantenmechanischen Teilchen, klassisch verbotene Gebiete zu durchqueren, indem sie durch eine Potentialbarriere hindurchtunneln.

Dieser Effekt kann in allen quantenmechanischen Systemen auftreten. Das Verständnis von Tunnelprozessen ist für viele grundlegende physikalischen Phänomene wie Radioaktivität [90] und Nukleosynthese, Molekülspektren oder der Elektronenemission von Metalloberflächen [91] wichtig.

Zum Tunnelvorgang gibt es kein klassisches Analogon. Im Gegensatz zu klassischen Teilchen haben Wellenfunktionen, die die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten von quantenmechanischen Teilchen beschreiben, eine ausgedehnte Verteilung. Trifft ein quantenmechanisches Teilchen auf eine Barriere, reicht die Wellenfunktion durch den klassisch verbotenen Bereich bis auf die andere Seite der Barriere, während ein Teil der Wellenfunktion vor der Barriere gebunden bleibt (siehe Abb. 4.1).

Seit den Anfängen der Quantenmechanik haben grundsätzliche Fragen zum Verständnis des Tunneleffektes große Aufmerksamkeit erregt, wobei die wichtigste Fragestellung lautet: Wie viel Zeit benötigt ein tunnelndes Teilchen für die Bewegung durch die Barriere? Oder ist der Tunnelvorgang instantan?

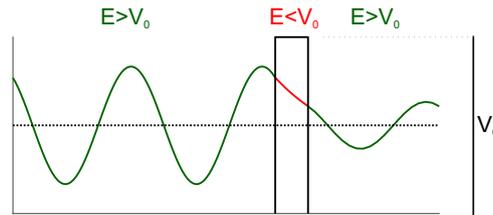


Abbildung 4.1: Quantenmechanisches Tunneln durch eine Barriere: Die quantenmechanische Wellenfunktion erstreckt sich in den Bereichen in und hinter dem klassisch verbotenen Gebiet (Abb. nach [92]).

Seit MacColls erstem Versuch im Jahr 1932, diese Frage zu beantworten [15], gibt es eine kontroverse und anhaltende Diskussion [93; 16; 94].

Dabei ist ein grundlegendes Problem, dass in der Quantenmechanik kein gut definierter Zeitoperator existiert [95]. Vielmehr ist die Zeit ein Parameter und keine beobachtbare Größe [96], sodass eine Vielzahl von verschiedenen Konzepten für eine Tunnelzeit entwickelt wurden [93; 92; 17; 97].

Die Aussagen über eine Tunnelzeit hängen daher stark von der verwendeten Definition ab und spiegeln verschiedene physikalische Aspekte des Prozesses wider, was zu Unterschieden in der physikalischen Interpretation führen kann [16; 98]. So wurde in diesem Zusammenhang schon die Frage diskutiert, ob Tunneln der speziellen Relativitätstheorie widerspricht [99; 100; 92]. Eine der Definitionen einer Tunnelzeit beruht auf der Idee einer durchschnittlichen Verweildauer (engl. „resident time“ oder „dwell time“) eines Teilchens innerhalb der Barriere. Dies kann als Interaktionszeit des tunnelnden Teilchens mit der Barriere verstanden werden und entspricht dem Konzept der Büttiker-Landauer-Zeit [91]. Sie ist die Zeit, die in der Barriere-region verbracht wird, gemittelt über alle eingehenden Partikel, unabhängig davon, ob ein Partikel transmittiert oder reflektiert wird [92].

Eine andere Definition bezeichnet die Zeit, während der das tunnelnde Partikel tatsächlich die Barriere durchquert (engl. „passage time“ oder „traversal time“). Auf diesem Konzept beruht eine der am meisten akzeptierten Definitionen, die Eisenbud-Wigner-Smith-Zeitverzögerung, kurz Wigner-Zeit. Sie verknüpft die Phasenverschiebung, die ein Wellenpaket durch die Interaktion mit einem zeitabhängigen Potential erhält, mit der Tunnelzeit [101]. Die Wigner-Zeit entspricht damit der asymptotischen Abweichung der Position des Maximums eines Wellenpakets von einem entsprechenden klassischen Weg [98].

Neben den zahlreichen theoretischen Konzepten stellt sich die Frage, wie der Tunneleffekt und die damit verbundene Größe der Tunnelzeit auch experimentell untersucht werden kann. Eine geeignete Möglichkeit stellen Experimente zur Tunnelionisation von Atomen in starken Laserfeldern dar [16]. Das Feld eines intensiven Laserpulses deformiert das Bindungspotential eines Atoms so stark, dass eine Potentialbarriere entsteht, durch die ein Elektron tunneln kann und dadurch das Atom ionisiert (siehe Kap. 2.1).

Dieser Ionisationsprozess beruht auf der Tunnelionisation durch eine oszillierende Barriere, die von Keldysh vor fast 50 Jahren vorgeschlagen wurde [5]. Auf Grundlage einer möglichen Definitionen der Tunnelzeit entwickelte Keldysh einen Parameter, um den Grad der Adiabaticität der Ionisation zu beschreiben (siehe Kap. 2.1). Die Tunnelzeit von Keldysh ist die Zeit, die ein klassisches Teilchen für die Durchquerung der Barriere benötigen würde, und ist damit

ein Spezialfall der Büttiker-Landauer-Zeit [91; 17]. Dieser Begriff der Tunnelzeit entspricht jedoch nicht einer Verzögerung im Sinne einer realen Zeit, die ein Elektron bei dem Durchlaufen der Barriere benötigt [17], sondern ist eine imaginäre Zeit, die den Abfall der elektronischen Wellenfunktion unter der Barriere beschreibt [102].

Durch die Entwicklung leistungsfähiger Laserquellen ist es heute möglich, Laserpulse mit sehr kurzer Pulsdauer auf sehr hohe Intensitäten zu fokussieren, bei denen die von Keldysh beschriebene Tunnelionisation von Atomen beobachtet werden kann. Da die Tunnelionisation grundlegend für die Starkfeld- und Attosekundenphysik ist [4], wurde sie experimentell und theoretisch intensiv untersucht. Allerdings sind Grundsatzfragen über die Tunnelzeit weiterhin ungelöst [103; 17].

Um diese Fragen zu klären, sollte die Ionisation im Tunnelregime und an einem sehr einfachen System, wie einem Atom mit nur einem Elektron, untersucht werden. Da die Schrödinger-Gleichung für ein Atom im Laserfeld nur für Einelektronensysteme separierbar ist, sind sie wichtige Testsysteme für die Theorie der Starkfeldionisation. Für diese Systeme können Experimente aber auch approximative Theorien (siehe Kap. 2.2) direkt mit numerischen Lösungen der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung verglichen werden [14].

Gegenstand der vorliegenden Arbeit sind daher Experimente zur laserinduzierten Tunnelionisation des Heliumions, welches ein Einelektronensystem mit der doppelten Ladung des Wasserstoffatoms darstellt und eine Untersuchung nahe am quasistatischen Idealfall der Ionisation ermöglicht (siehe Kap. 4.4.1).

## 4.2 Die Attoclock zur Untersuchung des Tunneleffekts

Ein Ansatz zur Bestimmung der Tunnelzeit in der Starkfeldionisation von Atomen ist die sogenannte Attoclock-Technik [83; 103; 104; 85; 17]. Die Idee der Attoclock beruht darauf, dass der rotierende elektrische Feldvektor eines zirkular bzw. elliptisch polarisierten Laserpulses ähnlich wie die Zeiger einer Uhr zur Bestimmung der Zeit in einem Ionisationsprozess genutzt wird. Wie bei einer Uhr unterscheidet man dabei zwischen einem Stundenzeiger und einem Minutenzeiger für die Angabe der Zeit auf einer groben und einer feinen Skala. Dieses Prinzip der Zeitnahme in der Starkfeldionisation wurde zuerst von Maharjan *et al.* für Ionisationsexperimente mit Argon- und Neonatomen diskutiert [83].

Unabhängig vom Polarisationszustand des Laserfeldes gilt, wird ein Elektron zum Zeitpunkt  $t_0$  durch Tunnelionisation aus seinem Atom befreit, erscheint es näherungsweise mit verschwindenden Anfangsimpuls  $p_0 \approx 0$  im Laserfeld (siehe Kap. 2.7). Danach wird das Elektron im Laserfeld beschleunigt und weist nach dem Laserpuls einen Driftimpuls  $\mathbf{p} = -\mathbf{A}(t_0)$  auf, der dem Vektorpotential zum Ionisationszeitpunkt  $t_0$  entspricht (siehe Gl. 2.16). Im Vergleich zu linear polarisierten Laserfeldern führt dieser Zusammenhang in elliptisch oder fast zirkular polarisierten Laserfeldern zu einigen Besonderheiten.

So steigt für Pulse mit zirkularer Polarisation die Amplitude des elektrischen Feldes gleichmäßig auf das Maximum des Laserpulses an. Der Impuls aus dem Vektorpotential zum Ionisationszeitpunkt  $t_0$  beträgt damit  $p = -A(t_0) \approx -E(t_0)/\omega$  und ist proportional zur Ionisationsfeldstärke und umgekehrt proportional zur Kreisfrequenz der Laserpulse. Daher gibt bei einer Messung der Betrag des Driftimpulses  $p$  Aufschluss über den Ionisationszeitpunkt auf der Skala der Einhüllenden des Laserpulses mit einer gegebenen Pulsdauer (siehe Abb. 4.2 (a)). Dies definiert den Stundenzeiger der Uhr [104].

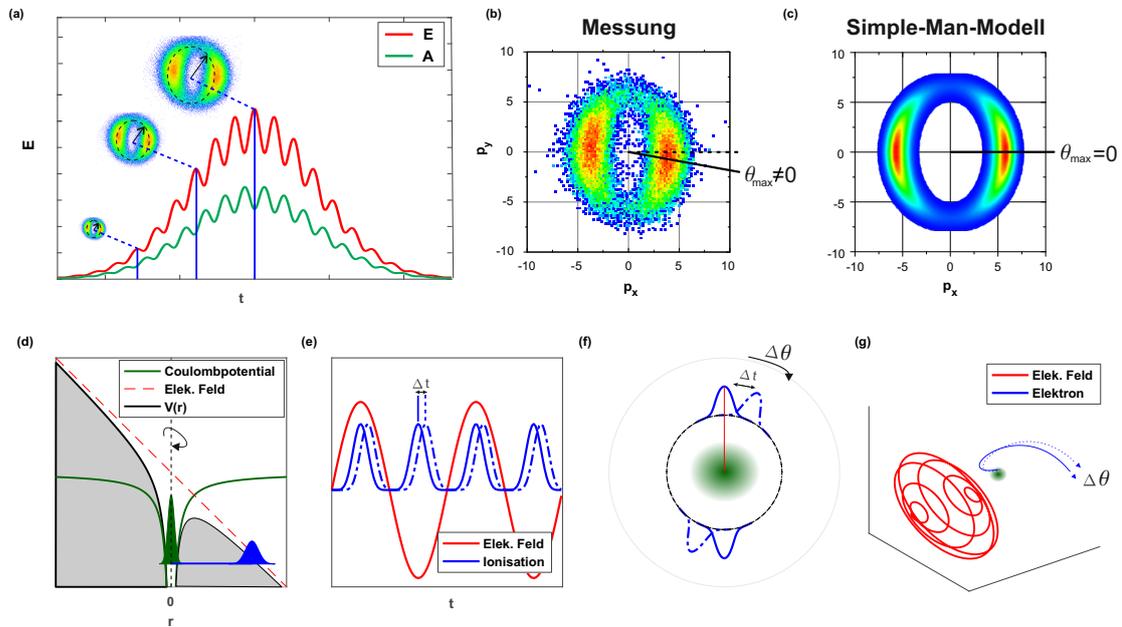


Abbildung 4.2: Prinzip der Messung von Tunnelzeiten mit elliptischer Polarisation (Attoclock-Technik): (a) Der Radius der gemessenen Impulsverteilung gibt Information über den Ionisationszeitpunkt innerhalb der Einhüllenden des Laserpulses („Stundenzeiger“ der Attoclock). (b-c) Die Winkelverteilung der Impulse enthält Informationen über den Ionisationszeitpunkt innerhalb eines Laserzyklus („Minutenzeiger“ der Attoclock). In Messungen ist das Maximum der Verteilung um den Winkel  $\theta_{\max}$  gegenüber den Achsen der Polarisationsellipse verdreht, während Simulationen auf Basis des Simple-Man-Modells keine Verdrehung zeigen ( $\theta_{\max}=0^\circ$ ). (d) Das Laserfeld verformt das Coulomb-Potential des Atoms und ermöglicht die Tunnelionisation durch die Barriere, die durch Kombination des Coulomb-Potentials mit dem Laserfeld gebildet wird. (e) Die Ionisationswahrscheinlichkeit folgt der Amplitude der elektrischen Feldstärke. Eine Verschiebung der Ionisation um eine hypothetische Tunnelzeit  $\Delta t$  bedeutet, dass das Elektron zu einer späteren Phase im Laserfeld erscheint. (f) Für zirkular bzw. elliptisch polarisierte Laserfelder entspricht die Verschiebung um  $\Delta t$  innerhalb des Laserzyklus einer Änderung des Emissionswinkels um  $\Delta \theta$  gegenüber einer nicht verzögerten Emission. (g) Die Emissionsrichtung wird auf den Impuls des Elektrons nach der Ionisation in einem elliptisch polarisierten Laserpuls übertragen und kann zur Rekonstruktion der Ionisationsdynamik genutzt werden.

Die einem Minutenzeiger entsprechende Information wird über die Richtung des Elektronenimpulses  $\mathbf{e}_p = \mathbf{p}/|p|$  gewonnen (siehe Abb. 4.2(b-g)). In erster Näherung erfolgt eine Beschleunigung des Elektrons in Richtung des Vektorpotentials zum Ionisationszeitpunkt  $-\mathbf{A}(t_0)$ . Das elliptisch polarisierte Vektorpotential rotiert genau wie das entsprechende elektrische Feld über  $360^\circ$  in einer Periode des Laserfeldes, die für die Laserwellenlänge von 800 nm eine Zeitdauer von 2,7 fs einnimmt. Eine Messung des Elektronenemissionswinkels mit einer Auflösung von  $1^\circ$  ermöglicht dann theoretisch die Messung der Ionisationszeit mit einer Auflösung von 7,5 as innerhalb eines Laserzyklus.

Diese Auswertung ist nur für elliptisch und nicht für zirkular polarisierte Felder sinnvoll, da im Fall zirkularer Polarisation die Winkelverteilungen eine perfekte Symmetrie besitzen und somit kein Referenzwinkel definiert werden kann. Für elliptische Polarisation beschreibt der Feldvektor jedoch eine Ellipse, sodass die Hauptachse der Polarisationsellipse eine Referenz für die Richtung der maximalen Feldstärke bereitstellt.

Der Ansatz der Attoclock-Technik, eine hypothetische Tunnelzeit zu messen, basiert auf der Analyse der Richtung der Elektronenemission in der Ionisation durch elliptisch polarisierte Laserpulse. Das angelegte rotierende Laserfeld verformt das Coulomb-Potential des Atoms, sodass das kombinierte Potential von Coulomb-Potential und Laserfeld eine Barriere bilden, durch die ein Elektron über Tunnelionisation aus dem Atom befreit werden kann (siehe Abb. 4.2(d)). Die Tunnelwahrscheinlichkeit folgt dabei der Amplitude des elektrischen Feldes und daher sollte auch die maximale Elektronenemission an den Maxima der Laserfeldoszillation zu erwarten sein (siehe Abb. 4.2(e)). Dies entspricht aufgrund von  $\mathbf{p} = -\mathbf{A}(t_0)$  einer Elektronenemission exakt entlang der kleinen Achse der Polarisationsellipse. Ist die Emission der Elektronen jedoch um eine Zeitdifferenz  $\Delta t$  verschoben, tritt das Elektron zu einem späteren Zeitpunkt in das Laserfeld ein. Im Vergleich zu der Ionisation am Feldmaximum hat sich die Richtung des Feldvektors dann um den Winkel  $\Delta\theta$ , der der Zeitdifferenz  $\Delta t$  entspricht, weiter gedreht (siehe Abb. 4.2(f)). Eine mögliche Tunnelzeit könnte somit über eine Rotation der maximalen Elektronenemission um den Winkel  $\theta_{\max}$ , die sich aus  $\mathbf{p} = -\mathbf{A}(t_0 - \Delta t)$  ergibt, gegenüber den Achsen der Polarisationsellipse identifiziert werden [104].

Obwohl die Idee, die Attoclock-Technik zur Bestimmung einer möglichen Tunnelzeit zu nutzen, auf den ersten Blick ein einfaches und einleuchtendes Konzept darstellt, gibt es zahlreiche Aspekte zu beachten, um eine fundierte Aussage über den Ablauf des Tunnelvorgangs treffen zu können. Eine wesentliche Voraussetzung für die Auswertung ist die Kenntnis der Orientierung der Laserpolarisation relativ zum Detektor. Da die gemessenen Änderungen des Elektronenemissionswinkels typischerweise sehr klein sind, muss das Laserfeld, welches die Ionisation des Targets hervorruft, sehr genau bekannt sein.

Ein wichtiger Aspekt für die Interpretation von Attoclock-Experimenten ist, dass es neben einer Tunnelzeit zahlreiche weitere Effekte gibt, die die experimentelle Messgröße des Elektronenemissionswinkels beeinflussen. Diese werden in Kap. 4.4.6 im Detail erklärt. Die Entflechtung all dieser Effekte ist nicht trivial, sodass Aussagen über eine Tunnelzeit mit Hilfe der Attoclock-Technik nicht allein aus der Messung, sondern nur im Vergleich mit theoretischen Simulationen, die die Beiträge aller relevanten Effekte ermitteln, möglich sind.

### 4.3 Das Rätsel der Tunnelzeit in Attoclock-Experimenten

In der Literatur existieren viele theoretischen Abhandlungen und einige experimentelle Untersuchungen über die Starkfeldionisation von Atomen in elliptisch polarisierten Laserfeldern, die zum Ziel hatten, die Fragen über eine mögliche Tunnelzeit zu beantworten. Inwieweit die Ergebnisse der Ionisationsexperimente mit den theoretischen Ansätzen für die Tunnelzeiten in Übereinstimmung zu bringen sind, ist noch nicht vollständig geklärt [17].

Im folgenden werden einige der wichtigsten Arbeiten und deren Ergebnisse vorgestellt.

Nach der ersten Arbeit von Maharjan *et al.* über die Attoclock [83], d.h. die Untersuchungen der Ionisation von Atomen mit elliptisch polarisierten Laserpulsen, wurden die Attoclock-Untersuchungen zur Tunnelzeit von Keller *et al.* geprägt [105; 104; 106; 107]. Sie stellten in Experimenten zur Ionisation von Heliumatomen fest, dass die Tunnelionisation instantan stattfindet, und bestimmten eine obere Grenze für die Tunnelzeit von 40 as [105]. Als wichtige Korrektur in der Emissionsrichtung des Elektrons wurde später die Interaktion des Elektrons mit dem Coulomb-Potential des zurückbleibenden Ions ausgemacht [104]. In den darauffolgenden Arbeiten der Gruppe um Keller *et al.* berichteten sie über eine nichtverschwindende Tunnelzeit zwischen 40 as und 120 as in einem großen Bereich von Intensitäten für Helium [106; 107].

Später untersuchte eine andere Arbeitsgruppe um Camus *et al.* die Elektronenspektren in einer kombinierten Messung von Krypton und Argon mit elliptischer Polarisation. Sie identifizierten über die Unterschiede zwischen beiden Atomen eine nichtverschwindende Tunnelzeit [108].

Mit einem anderen Ansatz untersuchten Shafrir *et al.* die Tunnelzeit in der Ionisation durch Erzeugung von hohen Harmonischen (HHG) und konnten dabei keine Tunnelzeit feststellen [109; 110].

Zur theoretischen Beschreibung sowie zur Interpretation der Messergebnisse werden sowohl semiklassische Simulationen für die Berechnung der Elektronentrajektorien (engl. Classical Trajectory Monte Carlo, CTMC) als auch die Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung (TDSE) herangezogen.

Semiklassische Simulationen von Elektronentrajektorien basieren auf der Bestimmung geeigneter Initialbedingungen, die die quantenmechanischen Eigenschaften eines getunnelten Wellenpaketes auf die Startorte, Startzeiten und Anfangsgeschwindigkeiten eines Ensembles von Elektronen übertragen. Die Resultate und die daraus folgenden Interpretationen der CTMC-Simulationen hängen stark von der konsistenten Wahl dieser Bedingungen ab [41].

In einer ausführlichen Analyse der Lösungen der TDSE des Wasserstoffatoms in einem Attoclock-Laserfeld wurde von Torlina *et al.* auf eine instantane Tunnelionisation geschlossen [111].

Teeny *et al.* fanden in eindimensionalen TDSE-Simulationen eine nichtverschwindende positive Tunnelzeit zwischen dem Maximum des elektrischen Feldes und dem Maximum der Ionisationsrate. Sie interpretierten die Verzögerung als Reaktionszeit der Wellenfunktion, die benötigt wird, um auf das äußere elektrische Feld zu reagieren [112; 113].

Zimmerman *et al.* verglichen verschiedene theoretische Ansätze für Tunnelzeiten und kamen zu dem Schluss, dass die Larmor-Zeit mit experimentellen Ergebnissen von Keller *et al.* [106] konsistent und somit Tunneln kein instantaner Prozess ist [114].

Eine aufschlussreiche Auswertung von Lösungen der TDSE wurde von Ni *et al.* entwickelt [115]. Durch eine klassische Rückpropagation der ionisierten Elektronenwellenpakete können die klas-

sischen Initialbedingungen der Elektronentrajektorien aus TDSE-Simulationen gewonnen werden. Die Ergebnisse zeigen, dass eine konsistente Beschreibung des Tunnelionisationsprozesses für eine verschwindende Tunnelzeit möglich ist [115; 41; 116].

Viele Arbeiten identifizieren im Zusammenhang zu Attoclock-Messungen nichtadiabatische Effekte in der Tunnelionisation. Nichtadiabatizität kann dabei als eine Änderung der Ionisationszeit aufgefasst werden, die zwar aus der Bewegung des Elektrons unter der Barriere folgt, allerdings nicht eine Ionisationszeit im Sinne einer Verzögerung ist [43]. Aus einer nichtadiabatischen Beschreibung folgt eine Korrektur der Startbedingungen des Elektrons nach dem Tunnelvorgang (siehe Kap. 2.6) [27; 40; 117; 95; 98; 116].

In diesem Zusammenhang fällt bei Betrachtung der experimentellen Arbeiten auf, dass die Experimente für die Attoclock typischerweise auf Edelgasatome und Laserparameter bei einigen  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> und 800 nm konzentriert sind (z.B. [103; 104]). Damit wird die Ionisationsdynamik in einem Bereich mit einem Keldysh-Parameter von  $\gamma > 1$  oder  $\gamma \approx 1$  untersucht, in dem kein klassisches Tunnelregime vorliegt und nicht eindeutig zwischen Tunnel- und Multiphotonenionisation unterschieden werden kann. Dennoch wird in den meisten Fällen eine quasistatische bzw. adiabatische Theorie zur Interpretation herangezogen [104; 108]. Die daraus folgenden Schwierigkeiten, die mit der Messung, Auswertung und Interpretation der Tunnelionisation im Rahmen der Attoclock-Technik verbunden sind, sind unter anderen für die anhaltende Diskussion über die Tunnelzeit verantwortlich.

## 4.4 Das Helium-Ion

### 4.4.1 Einleitung

Um den Tunnelprozess sowohl nahe am quasistatischen Idealfall der Ionisation als auch für ein Eielektronensystem zu untersuchen, wurde in dieser Arbeit das Heliumion für Attoclock-Experimente ausgewählt.

Die Ionisation von Atomen in starken Laserfeldern kann anhand des Keldysh-Parameters (siehe Kap. 2.1) in die beiden asymptotischen Grenzfälle der Multiphotonenionisation ( $\gamma \gg 1$ ) und der Tunnelionisation ( $\gamma \ll 1$ ) unterteilt werden [5] (siehe Kap. 2.1). Während diese beiden Fälle sowohl in der theoretischen Beschreibung als auch in einem intuitiven Bild gut verstanden sind, ist der Übergangsbereich, beschrieben durch einen Keldysh-Parameter  $\gamma \approx 1$ , wo der Tunnelvorgang allmählich in die Multiphotonenionisation übergeht, schwerer zu fassen (siehe Kap. 2.6). In diesem Fall kann die Oszillation des Laserfeldes während des Tunnelvorganges nicht vernachlässigt werden und das Problem des Tunnelns durch eine statische Barriere wird um den Effekt der Nichtadiabatizität erweitert [118].

Wie im letzten Kapitel verdeutlicht, gab es in den letzten Jahren Abhandlungen, die nichtadiabatische Effekte in der Tunnelionisation untersuchten und den Einfluss auf die Vermessung etwaiger Tunnelzeiten in dem Regime  $\gamma \approx 1$  diskutierten [40; 46; 119; 116; 41; 120]. Es wurde gezeigt, dass eine Interpretation der gemessenen Elektronenverteilungen bei Vernachlässigung der nichtadiabatischen Effekte auf eine nicht verschwindende Tunnelzeit führt [41].

Daher liegt es zur Untersuchung des Tunnelvorganges nahe, Bedingungen auszuwählen, die den Einfluss der nichtadiabatischen Effekte minimieren. Wie oben beschrieben, ist der Keldysh-Parameter  $\gamma$  ein Maß für die Adiabaticität [40]. Je weiter  $\gamma$  minimiert wird, desto mehr nähert sich der Ionisationsvorgang dem Idealfall des quasistatischen Tunnelvorganges an. Der Keldysh-

Parameter berechnet sich mit der Feldstärke  $E$ , Laserfrequenz  $\omega$  und dem Ionisationspotential  $I_P$  über  $\gamma = \omega \sqrt{\frac{2I_P}{E}}$  (siehe Kap. 2.1). Um  $\gamma$  zu minimieren, kann somit die Wellenlänge oder die Feldstärke des Laserfeldes erhöht werden.

Die Erhöhung der Feldstärke wird durch das Einsetzen der Barrier-Suppression-Ionisation begrenzt. Für sehr hohe Intensitäten wird das atomare Potential durch das Laserfeld so weit nach unten gedrückt, dass die Ionisation ohne Tunneln möglich ist (siehe Kap. 2.5). Dies limitiert bei fester Laserwellenlänge den minimal erreichbaren  $\gamma$ -Parameter. Wie eine einfache Betrachtung zeigt, hängt  $\gamma_{min}$  vom Ionisationspotential  $I_p$  des Targets ab. Wird für die maximale Intensität die Barrier-Suppression-Ionisationsintensität  $I_{BSI} = Z^{-2}(I_p/2)^4$  eingesetzt, erhält man

$$\gamma_{min} = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} = \sqrt{\frac{I_p}{2\frac{I_{BSI}}{4\omega^2}}} = \sqrt{\frac{2\omega^2 I_p}{\frac{1}{Z^2}(\frac{I_p}{2})^4}} = \sqrt{\frac{2^5 \omega^2 Z^2}{I_p^3}}, \quad (4.1)$$

wobei  $U_p$  das ponderomotive Potential und  $I$  die Laserintensität ist.

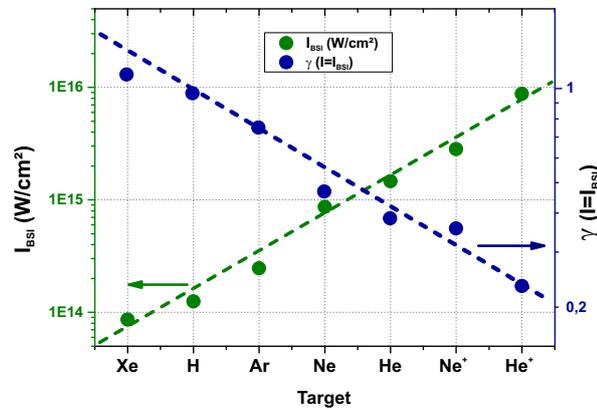


Abbildung 4.3: Intensität für die Barrier-Suppression-Ionisation und der Keldysh-Parameter an der Barrier-Suppression-Intensität für ausgewählte, typische Targets der Starkfeldphysik bei Verwendung von 800 nm-Laserpulsen.

Das Ionisationspotential kann durch die Wahl des Atoms bzw. Ions erhöht werden. Wie in Abb. 4.3 dargestellt, erlauben vor allem Atome mit hohen  $I_p$  das Erreichen von niedrigen  $\gamma$ -Parametern. Um ein Experiment mit 800 nm-Laserpulsen im Tunnelregime durch Minimierung von  $\gamma$  zu realisieren, bietet sich das He<sup>+</sup>-Ion an. Für dieses Ion kann die Bedingung  $\gamma < 1$  erreicht werden und nichtadiabatische Effekte sind für He<sup>+</sup> somit fast vernachlässigbar.

Der zweite Grund für die Auswahl von He<sup>+</sup> in dieser Arbeit ist, dass das He<sup>+</sup> ein Einelektronensystem darstellt. Einelektronensysteme dienen in der Atomphysik als wichtige Referenz- und Testsysteme für die theoretische Beschreibung von Atomen (siehe Kap. 1). Das He<sup>+</sup> nimmt dabei als Einelektronensystem denselben Stellenwert wie das Wasserstoffatom ein.

Genau wie für das He<sup>+</sup>-Ion ist die experimentelle Umsetzung eines Starkfeldexperimentes für das Wasserstoffatom schwierig. Atomarer Wasserstoff muss erst aus molekularem Wasserstoff hergestellt werden und die Messung wird durch einen Anteil von nichtdissoziierten oder rekombinierten Wasserstoff beeinträchtigt [121; 14]. Kürzlich wurde von Sainadh *et al.* eine Messung von Wasserstoff mit elliptischer Polarisation vorgenommen [122]. Grundlegender Unterschied zu dem He<sup>+</sup> ist, dass für Wasserstoff mit 800 nm der Keldysh-Parameter mit  $\approx 1$  höher ist, sodass dabei der Übergangsbereich von Tunnelionisation und Multiphotonionisation vorliegt. Um die Bedingung  $\gamma < 1$  zu erfüllen, müsste für Wasserstoff eine längere Laserwellenlänge

gewählt werden.

#### 4.4.2 Experiment mit He<sup>+</sup>

Das in dieser Arbeit durchgeführte Ionisationsexperiment mit He<sup>+</sup>-Ionen weist im Vergleich zu den typischerweise in der Literatur dokumentierten Attoclock-Experimenten mit neutralen Atomen einige zusätzliche Herausforderungen auf.

Wie in Kap. 4.4.1 diskutiert, hat das He<sup>+</sup> mit 54 eV ein hohes Ionisationspotential. Dies entspricht einer Barrier-Suppression-Ionisationsintensität von  $8,5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  in eindimensionaler Betrachtung bzw.  $4,7 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  in parabolischen Koordinaten (siehe Kap. 2.5). Daraus ergibt sich, dass sehr hohe Laserintensitäten notwendig sind, um die Ionisation des He<sup>+</sup> in einem Experiment zu beobachten. Weiterhin folgt aus der vergleichsweise geringen Dichte von Ionenstrahlen im Vergleich zu neutralen Targets, dass das aktive Fokussvolumen der Intensitätsverteilung möglichst groß sein sollte, um eine ausreichende Statistik der Messung zu ermöglichen. Dies kann nur mit Laserpulsen mit hohen Pulsenergien erreicht werden, die für dieses Experiment von einem 10 mJ-Lasersystem bei 800 nm zur Verfügung gestellt wurden (siehe Kap. 8.3.1).

Vor der Ionisation muss das He<sup>+</sup> in einer Ionenquelle aus neutralem Helium erzeugt werden. Dazu wird der in Kap. 3.1 vorgestellte Aufbau einer Ionenstrahlapparatur genutzt, um einen kollimierten Strahl von He<sup>+</sup>-Ionen bereitzustellen. Nach der Interaktion der Ionen mit dem fokussierten Laserstrahl werden die ionisierten He<sup>2+</sup>-Fragmente detektiert und ihre Impulse aus der Flugzeit und dem Detektionsort rekonstruiert.

Der in Kap. 3.1 beschriebene Aufbau wird zumeist für die Untersuchung der Fragmentation molekularer Ionen wie H<sub>2</sub><sup>+</sup> eingesetzt. Gegenüber den Messungen von molekularen Ionen gibt es für die Detektion der Ionisation atomarer Ionen zwei wesentliche Unterschiede, die die Messung von He<sup>+</sup> zusätzlich erschweren.

Zum einen ändern sich für die ionischen Fragmente bei der Starkfeldionisation die Impulse weit weniger als die der Fragmente von Molekülen. Der Betrag des durch die Laserwechselwirkung auf das Ion übertragenen Impulses entspricht dem Impuls des Photoelektrons (siehe Kap. 2.4). Aufgrund der großen Masse des Ions im Vergleich zu der Masse des Elektrons ist die zusätzliche Geschwindigkeitskomponente für das Ion im Vergleich zur Geschwindigkeit des Ionenstrahls gering. Um dies zu kompensieren und eine möglichst gute Nutzung der Detektorausdehnung zu gewährleisten, wird mit einer geringen Anfangsgeschwindigkeit der Ionen durch eine Extraktionsspannung an der Ionenquelle von 6,5 kV gearbeitet. Zusätzlich wurde für dieses Experiment der Flugarm, also die Strecke zwischen Laserinteraktionszone und Detektor, auf die maximale, durch die Größe des Labors limitierte, Länge von 2,4 m verändert. Ein zweiter wichtiger Unterschied zu molekularen Ionenstrahlen liegt in der Detektion der Fragmente. Für molekulare Ionen können alle nuklearen Fragmente in Koinzidenz detektiert werden. Die Koinzidenzdetektion mehrerer im selben Prozess erzeugter Teilchen erlaubt in der Datenauswertung die Identifizierung von Messsignalen, die mehr als eine Größenordnung unter dem Hintergrundsignal liegen (siehe Kap. 6). Für die Starkfeldionisation von atomaren Ionen wird mit dem genutzten Aufbau jedoch nur ein Fragment, das Ion, registriert. Da es mit dem Aufbau nicht möglich ist, das entsprechende Photoelektron zu detektieren, kann in dem Fall keine Koinzidenzdetektion genutzt werden (siehe Kap. 3.7).

### 4.4.3 Impulsverteilungen für die Ionisation von He<sup>+</sup>

Die Impulsverteilungen nach der Ionisation von He<sup>+</sup>-Ionen mit verschiedenen Elliptizitäten von linearer bis zirkularer Polarisation der 800 nm-Laserpulse bei einer maximalen Fokusintensität von  $\approx 1 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> sind in Abb. 4.4 dargestellt. Die gemessenen Impulsverteilungen der Ionen entsprechen aufgrund der Impulserhaltung  $\mathbf{p}_{Ion} + \mathbf{p}_{Elek} = 0$  für Einfachionisation den Impulsverteilungen der Photoelektronen und lassen sich sehr gut mit dem in Kap. 2.7 vorgestellten Modell der Starkfeldionisation verstehen [83]. Für die lineare Polarisation ist die Impulsverteilung mit einem Maximum um den Impuls  $p = 0$  entlang der linearen Polarisation ausgerichtet. Für höhere Elliptizitäten weist die Impulsverteilung zwei Maxima auf, die sich im Fall der zirkularen Polarisation zu einem Ring vereinigen. Damit folgt die Form der Verteilungen den semiklassischen Vorhersagen, dass der Driftimpuls  $\mathbf{p} = \mathbf{A}(t_0)$  durch das Vektorpotential des ionisierenden Feldes im Augenblick der Ionisation bestimmt wird.

Für eine Auswertung der Impulsverteilungen im Sinne einer Attoclock-Messung eignen sich Impulsverteilungen bei einer Elliptizität von  $\epsilon \approx 0,75$  am besten. Um die feldstärkenabhängigen Elektronenemissionswinkel analysieren zu können, wurden Messungen mit dieser Laserpolarisation bei verschiedenen Fokusintensitäten durchgeführt.

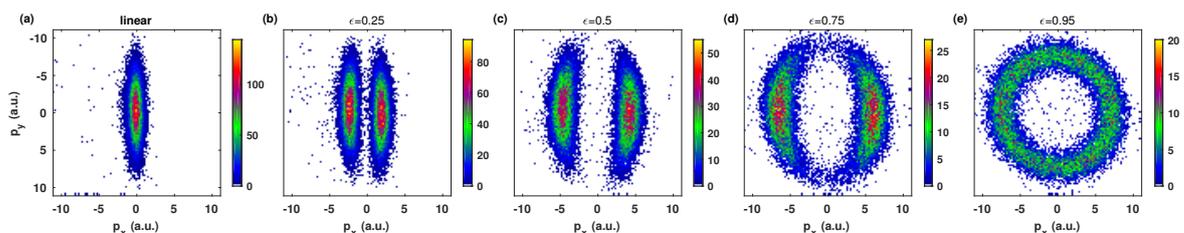


Abbildung 4.4: Gemessene Impulsverteilungen der Ionen für die Ionisation von He<sup>+</sup> bei 800 nm mit verschiedenen Elliptizitäten von linear bis nahezu zirkular für die maximale Fokusintensität von  $\approx 1 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> für Messungen mit ungefähr gleich langen Messzeiten.

### 4.4.4 Bestimmung des Elektronenemissionswinkels

Die Attoclock-Methode (siehe Kap. 4.2) beruht auf der Bestimmung des wahrscheinlichsten Elektronenemissionswinkels in Abhängigkeit der angelegten Laserfeldstärke. Der Winkel wird basierend auf einer gemessenen Impulsverteilung relativ zur Lage der Laserpolarisation analysiert (siehe Abb. 4.2 (b)). Daher ist für die Auswertung des Experimentes die Kalibrierung der Lage der Laserpolarisation von entscheidender Bedeutung. In der Literatur finden sich bisher zwei Möglichkeiten, die Kalibrierung durchzuführen. Beide Methoden wurden in dieser Arbeit getestet.

Die erste Methode beruht auf der polarimetrischen Messung der Laserpolarisation für den Fall linearer und elliptischer Polarisation. Der Vergleich der Polarisationsergebnisse und der gemessenen Impulsverteilungen für verschiedene Laserelliptizitäten erlaubt den Rückschluss auf die Lage der Laserpolarisation in den Impulsverteilungen. Es ist jedoch erforderlich, die Informationen aus der Polarimetrie und den Impulsmessungen jeweils durch Kurvenanpassungen zu ermitteln und zu kombinieren. Dabei kann jede Kurvenanpassung für sich eine Unsicherheit in der Größenordnung von  $\gtrsim 1^\circ$  aufweisen. Die Polarimetriemessung hat das Ziel, den Polarisationszustand im Laserfokus der Messung zu ermitteln. Aufgrund der hohen Intensität

kann die Messung jedoch nicht im Fokus durchgeführt werden. Die Polarimetriemessung muss an einer anderen Stelle im Strahlengang erfolgen. In dem genutzten Aufbau ist dies jedoch nur außerhalb der Vakuumkammer, d.h. eine Messung nur vor dem Eintritts- oder nach dem Austrittsfenster möglich.

Die zweite Methode stellt die Ausnutzung der Symmetrie der Viertelwellenplatte dar, wie sie von Pfeiffer *et al.* [104] verwendet wurde. Für zwei Orientierungen der Viertelwellenplatte, die sich um 90° unterscheiden, ist die Polarisierung bis auf die Drehrichtung des elektrischen Feldvektors identisch. Um diesen Ansatz zu testen, wurde die Messung der Impulsverteilungen für zwei Stellungen der Viertelwellenplatte, die um 90° zueinander verschoben sind, durchgeführt. Dabei zeigte sich jedoch nicht das erwartete Verhalten, sondern die Impulsverteilungen wiesen Orientierungen der Polarisationshauptachsen auf, die um mehr als 10° voneinander abwichen. Zusammenfassend muss für den genutzten Aufbau festgestellt werden, dass beide Methoden zur Kalibrierung der Polarisationsrichtung auf Grundlage der Polarimetriemessungen nicht mit ausreichender Genauigkeit im Einklang mit den Messergebnissen der Impulsverteilungen zu bringen sind. Vermutlich sind dafür die hohen Laserpulsenergien mit den daraus folgenden nichtlinearen Effekten verantwortlich.

Es wurde daher eine andere Methode zur Auswertung entwickelt, um einem Vergleich der gemessenen und simulierten Impulsverteilungen zu ermöglichen. Der Ansatz beruht darauf, die Orientierung der Laserpolarisation aus den jeweiligen Impulsverteilungen der Messung zu ermitteln.

Um dies zu erreichen, wird eine zweidimensionale Kurvenanpassung an die Impulsverteilung vorgenommen. Die genutzte Funktion beschreibt zwei gaußförmige Maxima, die entlang einer Ellipse angeordnet sind und die Form der gemessenen Impulsverteilungen nachstellen. Dabei wird ausgenutzt, dass die Impulsverteilung der Elektronen bzw. Ionen in der Polarisationssebene nach einfacher Tunnelionisation sehr gut durch Gaußfunktionen in den elliptizitätskorrigierten Polarkoordinaten approximiert werden kann [123; 68]. Die zweidimensionale Funktion, die die Impulsverteilung der Einfachionisation in der Laserpolarisationsebene (x-y-Ebene) beschreibt, hat die Form

$$F = \exp\left(-\left(\frac{\sqrt{\left(\frac{x}{a}\right)^2 + \left(\frac{y}{b}\right)^2} - 1}{\Delta r}\right)^2\right). \quad (4.2)$$

$$\left[ A_1 \exp\left(-\left(\frac{\text{atan}(x, y) - \theta_0}{\Delta\theta}\right)^2\right) + A_2 \exp\left(-\left(\frac{\text{atan}(x, y) - \theta_0 + \pi}{\Delta\theta}\right)^2\right) \right].$$

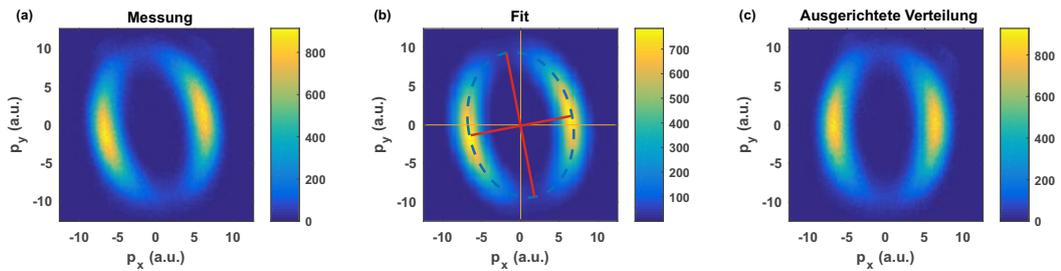


Abbildung 4.5: Fit der Laserpolarisation der Impulsverteilung nach Ionisation mit elliptischer Polarisation: (a) Gemessene Impulsverteilung, (b) Zweidimensionale Funktion nach Fit an (a), (c) Um den mit der Fitfunktion bestimmten Winkel (10,7°) gedrehte Impulsverteilung.

Es wurde zunächst angenommen, dass die Ellipse entlang der Achsen des Koordinatensystems ausgerichtet war. Die Ausrichtung und der Mittelpunkt der Ellipse können als freie Parameter ergänzt werden, was einer Drehung der Impulskoordinaten um einen Winkel  $\alpha$  und einer Verschiebung entlang  $x$  um  $x_0$  und entlang  $y$  um  $y_0$  entspricht. Um die zweidimensionale Funktion um diese Drehung und Verschiebung zu ergänzen, müssen die Argumente für die Funktion der Ellipse in Polarkoordinaten  $r = \sqrt{(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2}$  sowie  $\theta = \text{atan}(x - x_0, y - y_0)$ , um den Winkel  $\alpha$  gedreht werden.

Es folgt:

$$F(r(x, y, x_o, y_o), \theta(x, y, x_o, y_o), a, b, \alpha, \theta_0, \Delta r, \Delta \theta, A_1, A_2) = \quad (4.3)$$

$$\exp\left(-\left(\frac{\sqrt{\left(\frac{r \cos(\theta - \alpha)}{a}\right)^2 + \left(\frac{r \sin(\theta - \alpha)}{b}\right)^2} - 1}{\Delta r}\right)^2\right) \cdot$$

$$\left[ A_1 \exp\left(-\left(\frac{\text{atan}(r \cos(\theta - \alpha), r \sin(\theta - \alpha)) - \theta_0}{\Delta \theta}\right)^2\right) + \right.$$

$$\left. A_2 \exp\left(-\left(\frac{\text{atan}(r \cos(\theta - \alpha), r \sin(\theta - \alpha)) - \theta_0 + \pi}{\Delta \theta}\right)^2\right) \right]$$

Diese Funktion  $F$  wird zur Beschreibung eines Einfachionisationsschrittes mit der Methode der kleinsten Quadrate an die gemessenen Impulsverteilungen angepasst und damit Ergebnisse für  $a, b, \alpha, \theta_0, \Delta r, \Delta \theta, A_1$  und  $A_2$  ermittelt. Die genutzte Funktion kann die Form der gemessenen Impulsverteilungen sehr gut nachbilden (siehe Abb. 4.5).

Die Methode wurde anhand von Impulsverteilungen, die mit semiklassischen Simulationen und durch TDSE-Simulationen gewonnen wurden, getestet, da für die Simulationen die Lage der Laserpolarisation bekannt ist. Die Ergebnisse zeigten, dass diese Methode geeignet ist, die Orientierung der Laserpolarisation aus den Impulsverteilungen mit einer Genauigkeit von 1° zu ermitteln, wenn die Ionisation für niedrige Intensitäten unterhalb der Sättigungsintensität ausgewertet wird.

#### 4.4.5 Auswertung der Attoclock für He<sup>+</sup>

Die Attoclock stützt sich auf die Bestimmung des Emissionswinkels relativ zur kleinen Halbachse der Polarisationsellipse, unter dem das Maximum der Zählrate der Impulsverteilung zu finden ist (siehe Kap. 4.2). Die in der Literatur vorhandenen Untersuchungen beschränken sich auf die Auswertung des Emissionswinkels einer Impulsverteilung, die für eine Messung mit einer bestimmten Fokusintensität ermittelt wurde. Dies ist schematisch in Abb. 4.6 (a) dargestellt und als Fitmethode 1 bezeichnet. Der Winkel wird dabei über einen Fit an die Winkelverteilung, in der unabhängig vom Betrag des Impulses alle Ereignisse einer Messung mit einer maximalen Fokusintensität eingehen, bestimmt. Für die Messung von He<sup>+</sup> führt diese Methode der Auswertung zu dem in (b) dargestellten Verlauf für den Winkel  $\theta_{\max}$  in Abhängigkeit der Peakintensität im Laserfokus. Der Winkel  $\theta_{\max}$  beträgt ungefähr 3° und zeigt nur eine sehr geringe Abhängigkeit von der Intensität.

Um eine differentiellere Analyse zu ermöglichen, wurde in dieser Arbeit ein anderer Ansatz genutzt. Für die gesamte intensitätsabhängige Messung wurden die Impulskomponenten  $p_x$

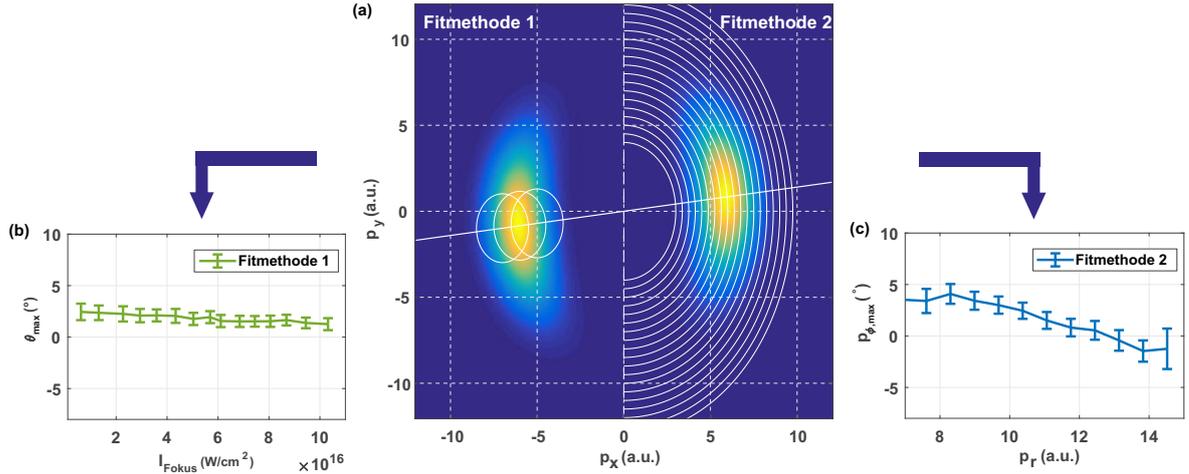


Abbildung 4.6: Vergleich der Methoden zur Auswertung der Intensitätsabhängigkeit des Elektronenemissionswinkels für die Attoclock-Messung mit He<sup>+</sup>: (a) In den bisherigen Arbeiten wurde üblicherweise der Winkel  $\theta_{\max}$  über einen Fit an die Impulsverteilung ermittelt, die für eine Fokusintensität gemessen wurde. Dies wird dann für verschiedene Intensitäten wiederholt (links: Fitmethode 1). Es ist auch möglich, nach Transformation in elliptizitätskorrigierte Polarkoordinaten den Winkel  $p_{\phi, \max}$  über für verschiedene Intervalle des radialen Impulses  $p_r$  für eine Messung zu ermitteln (rechts: Fitmethode 2). (b) Das Ergebnis  $\theta_{\max}$  der Fitmethode 1 für Messungen mit verschiedener Peakintensität zeigt für He<sup>+</sup> nur eine sehr geringe Abhängigkeit von der Intensität. (c) Das Ergebnis der Fitmethode 2 mit dem Ergebnis in Polarkoordinaten für den Winkel  $p_{\phi, \max}$  macht eine deutlich stärkere Abhängigkeit vom radialen Impuls  $p_r$  sichtbar. Die Fehlerbalken zeigen das 95%-Konfidenzintervall der Kurvenanpassung einer Gauß-Funktion zur Ermittlung des wahrscheinlichsten Winkels an.

und  $p_y$  in elliptizitätskorrigierte Polarkoordinaten transformiert [123]. Dies entspricht folgender Transformation:

$$p_r = \sqrt{(\epsilon^2 + 1)/\epsilon^2 p_x^2 + (\epsilon^2 + 1)p_y^2} \quad (4.4)$$

$$p_\phi = \text{atan}((p_x/\epsilon)/p_y) \quad (4.5)$$

Der radiale Impuls  $p_r$  kann direkt als Maß für die elektrische Feldstärke des Laserfeldes zum Zeitpunkt der Ionisation genutzt werden (siehe Kap. 4.2) [123]. Bei hinreichend guter Statistik kann der Winkel  $p_{\phi, \max}$  der Impulse damit in Abhängigkeit von  $p_r$  analysiert werden, indem die Histogramme in Abhängigkeit von  $p_\phi$  für verschiedene  $p_r$  jeweils mit einem Fit ausgewertet werden. Dies ist schematisch in Abb. 4.6 (a) auf der rechten Seite (Fitmethode 2) dargestellt. Für die Messung des He<sup>+</sup> führt dieses Vorgehen zu der in (c) abgebildeten Abhängigkeit des Winkels  $p_{\phi, \max}$  vom radialen Impuls  $p_r$ . Für kleine  $p_r \approx 9$  a.u. und damit geringe Ionisationsfeldstärken wird ein Winkel  $p_{\phi, \max}$  von 5° beobachtet, der für steigende  $p_r \approx 14$  a.u. bis auf 0° abfällt.

Der Vergleich macht deutlich, dass die geringe Intensitätsabhängigkeit der in der Literatur verwendeten Auswertung (Fitmethode 1) eine Folge der Mittelung über verschiedene radiale Impulse ist, die von verschiedenen Intensitäten im Laserfokus stammen.

Die hier genutzte Analysemethode (Fitmethode 2) erlaubt es, den Emissionswinkel über einen deutlich größeren Bereich von Ionisationsfeldstärken zu untersuchen und mehr Informationen aus den gemessenen Impulsverteilungen zu extrahieren. Um einen ähnlich großen Bereich von

Feldstärken mit der Fitmethode 1 zu erfassen, wäre eine Variation der Intensität über einen sehr großen Bereich, insbesondere in Richtung der niedrigen Intensitäten, notwendig. Aufgrund der dafür erforderlichen langen Messzeiten und insbesondere der geringen Targetdichte eines Ionenstrahls ist dies für das vorliegende Experiment nahezu unmöglich.

Die Verwendung von  $p_r$  als Maß für die Ionisationsfeldstärke bzw. Intensität ist auch deshalb sinnvoll, da die Intensität in der Messung nur schwer mit der erforderlichen Genauigkeit zu ermitteln ist. Grundsätzlich kann die Relation zwischen Elektronenimpuls und Ionisationsfeldstärke direkt genutzt werden. Es muss allerdings beachtet werden, dass nichtadiabatische Korrekturen notwendig sein können [46], die für He<sup>+</sup> aber sehr gering sind (siehe Kap. 4.4.6.4). In der folgenden Auswertung wird der Winkel  $p_{\phi, \max}$  aus der Kurvenanpassung in elliptizitätskorrigierten Polarkoordinaten diskutiert. Dabei muss angemerkt werden, dass dieser Winkel nicht identisch mit dem in der Literatur üblichen Winkel  $\theta_{\max}$  ist.

#### 4.4.6 Semiklassische Simulationen

Das Ziel dieses Kapitels ist, die gemessenen Verteilungen mit einem einfachen Modell zu reproduzieren und auf diesem Weg eine Tunnelzeit zu bestimmen. Gegenüber dem in Kap. 2.7 diskutierten sehr einfachen Modell der Starkfeldionisation, die auch als Simple-Man-Theorie bezeichnet wird, müssen einige bekannte Effekte in die Rechnung aufgenommen werden, die (wie die hypothetische Tunnelzeit) ebenfalls zu einer Verdrehung der Impulsverteilung führen, also  $p_{\phi, \max}$  beeinflussen.

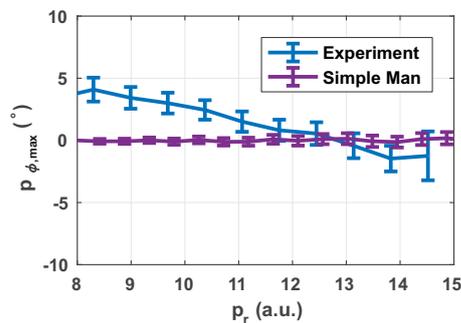


Abbildung 4.7: Ergebnisse für den  $p_r$ -abhängigen Elektronenemissionswinkel  $p_{\phi, \max}$  der Impulsverteilungen: Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit der CTMC-Simulation auf Basis des Simple-Man-Modells.

Ausgehend von dem einfachsten Ansatz hat die Ionisation an den Maxima des Laserfeldes die höchste Wahrscheinlichkeit. Aus der Relation  $\mathbf{p} = -\mathbf{A}(t_0)$  folgt aufgrund des Verhältnisses  $\mathbf{A}(t) = -\int_{-\infty}^t \mathbf{E}(t') dt'$ , dass die Elektronenemission um 90° zur Hauptachse der Polarisationsellipse des angelegten Laserpulses ausgerichtet ist (siehe Kap. 4.2). Wie in der Auswertung der Messdaten in Abb. 4.7 dargestellt, weicht der beobachtete Winkel für He<sup>+</sup> zwischen 5° und 0° von dieser vereinfachten Annahme ab.

Neben den etwaigen Beiträgen einer Tunnelzeit, die, wenn vorhanden, nur eine sehr kleine Winkeländerung hervorrufen, nehmen eine Reihe weiterer Effekte Einfluss auf die Emissionsrichtung  $p_{\phi, \max}$  der Elektronen (siehe Kap. 4.3):

- Effekt der Einhüllenden

- Grundzustandsentleerung
- Coulomb-Wechselwirkung
- Nichtadiabatische Effekte

Um die Auswirkungen dieser Effekte auf die Impulsverteilungen zu verstehen, kann mit Hilfe von semiklassischen Monte-Carlo-Simulationen von Elektronentrajektorien (CTMC) der Ionisationsprozess simuliert werden. Basierend auf Ionisationsraten wird ein Ensemble von Ionisationszeiten erzeugt und Startbedingungen der Elektronentrajektorien festgelegt, die die Berechnung der Impulse der Elektronen bzw. Ionen nach der Ionisation ermöglichen [104].

Die experimentellen Parameter wie Pulsdauer und die dreidimensionale Verteilung der Intensitätsverteilung im Laserfokus werden berücksichtigt. Der Beitrag jeder Feldstärke zum Ensemble der Ionenimpulse wird mit den entsprechenden Ionisationswahrscheinlichkeiten und der relativen Häufigkeit dieses Intensitätswertes im dreidimensionalen Gaußschen Fokus gewichtet [75]. Ebenfalls erfolgt eine Mittelung über die zufällige CEP im Experiment.

In Abb. 4.8 sind die gemessenen und über CTMC und TDSE (Details siehe Kap. 4.4.7) simulierten Impulsverteilungen dargestellt. Die Verteilungen zeigen einen hohen Grad der Übereinstimmung. Gegenstand der Attoclock ist die Untersuchung des wahrscheinlichsten Elektronenemissionswinkels  $p_{\phi, \max}$ . Die folgenden Kapiteln diskutieren den Einfluss der oben aufgelisteten Effekte auf diesen Winkel in den CTMC-Simulationen.

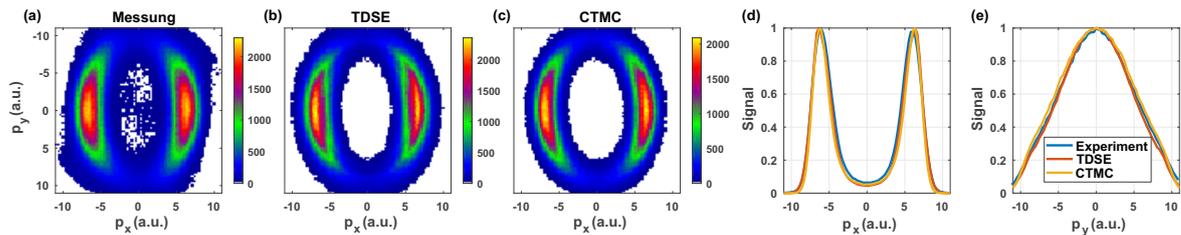


Abbildung 4.8: Gemessene Impulsverteilungen der Ionen für die Ionisation von He<sup>+</sup> bei 800 nm und  $\epsilon = 0,75$  im Vergleich zu den intensitätsgemittelten Simulationsergebnissen für die TDSE (Details siehe Kap. 4.4.7) und CTMC (Startbedingungen basierend auf parabolischen Koordinaten, siehe Kap. 4.4.6.3) für die maximale Fokusintensität von  $\approx 1 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. Die Projektionen der Verteilungen sind in (d) und (e) dargestellt.

#### 4.4.6.1 Effekt der Laserpulseshüllen

Aus dem einfachen Modell der Starkfeldionisation (siehe Kap. 2.7) folgt, dass die Elektronen nach der Ionisation einen Driftimpuls in Richtung des Vektorpotentials entsprechend  $\mathbf{p} = -\mathbf{A}(t_0)$  bekommen. Schon in diesem Simple-Man-Modell hängt die Richtung der Elektronenemission jedoch von der Ionisationszeit in der Laserpulseshüllen ab.

Entscheidend für die Richtung der Elektronenimpulse ist der Winkel zwischen dem elektrischen Feld und seinem Vektorpotential an den Maxima des elektrischen Feldes, da zu diesen Zeitpunkten die Ionisationsrate maximal wird.

Das elektrische Feld eines Laserpulses kann im Zeitbereich als Produkt der Trägeroszillation mit einer gaußförmigen Einhüllenden beschrieben werden [124]

$$E(t) = E_0 e^{-2 \ln(2) \frac{t^2}{\tau_0^2}} \sin(\omega t). \quad (4.6)$$

Da das Vektorpotential durch  $\mathbf{A}(t) = -\int_{-\infty}^t \mathbf{E}(t') dt'$  gegeben ist, folgt aus der Integration des Feldes einschließlich der Einhüllenden, dass die Maxima des Vektorpotentials und des elektrischen Feldes im Allgemeinen zueinander verschoben sind (siehe Abb. 4.9). Nur am Maximum der Laserpulseinhüllenden beträgt der Winkel exakt 90°.

Dies wird dadurch verstärkt, dass die Maxima des Laserfeldes in den Flanken des Pulses nicht exakt an den Maxima der Oszillation der Trägerfrequenz des Laserpulses liegen, da sich die instantane Feldstärke als Produkt der Einhüllenden und der Trägeroszillation ergibt. Zum Vergleich zeigt die gestrichelte Linie in Abb. 4.9 den Winkel zwischen  $\mathbf{E}$ - und  $\mathbf{A}$ -Feld an den Maxima der Trägeroszillation.

Wird eine symmetrische Ionisation über die Pulseinhüllende für die Berechnung der Elektronenimpulse innerhalb des Simple-Man-Modells angenommen, heben sich die Effekte der Laserpulseinhüllenden aus der ansteigenden und abfallenden Flanke auf und der wahrscheinlichste Elektronenemissionswinkel  $p_{\phi, \max}$  liegt entsprechend der Erwartung des Simple-Man-Modells bei 0° (siehe Abb. 4.7). Einen entscheidenden Einfluss hat die Laserpulseinhüllende jedoch, wenn zusätzlich der Effekt der Grundzustandsentleerung einbezogen wird (siehe Kap. 4.4.6.2).

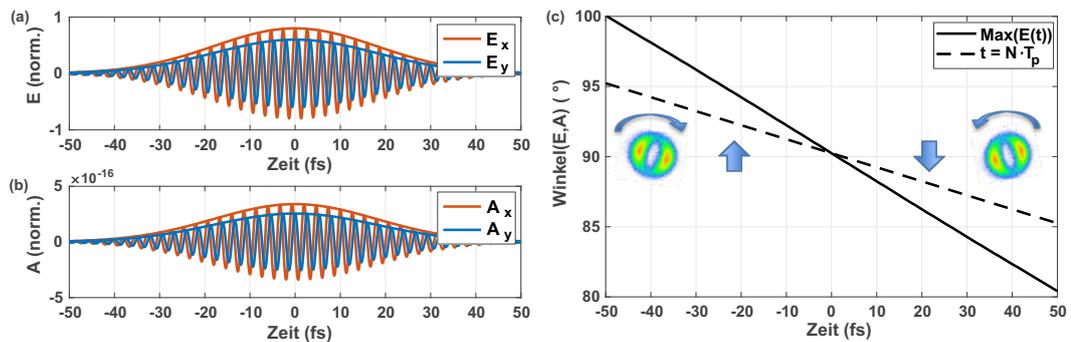


Abbildung 4.9: Effekt der Laserpulseinhüllenden auf den Elektronenemissionswinkel  $p_{\phi, \max}$ : Elektrisches Feld  $\mathbf{E}(t)$  (a) und Vektorpotential  $\mathbf{A}(t)$  (b) eines Laserpulses mit 800 nm, 30 fs und einer Elliptizität von 0,75, (c) Winkel zwischen  $\mathbf{E}(t)$  und  $\mathbf{A}(t)$  an den Maxima des Laserfeldesoszillation  $E(t)$  (durchgezogene Linie) und den Maxima der Trägeroszillation (gestrichelte Linie).

#### 4.4.6.2 Grundzustandsentleerung

Werden an ein Atom sehr hohe Feldstärken angelegt, erreicht die Ionisationswahrscheinlichkeit Werte von  $\approx 1$  und es kommt zur Entleerung des Grundzustandes. Für sehr intensive Laserpulse kann daher beobachtet werden, dass die Ionisation weit vor dem Peak des Laserpulses maximal wird und in Sättigung geht. Später im Laserpuls findet keine Ionisation des Atoms mit dem betrachteten Ladungszustand mehr statt. Damit ist die effektive Feldstärke der Ionisationsprozesse deutlich geringer als die maximale Feldstärke, die am Laserpulsmaximum erreicht wird. Dieser Effekt limitiert einerseits die maximale Feldstärke, bei der ein Ionisationsvorgang untersucht werden kann, und muss bei dem Vergleich von experimentellen und simulierten Ergebnissen beachtet werden.

Andererseits bewirkt die Entleerung des Grundzustandes, dass der Schwerpunkt der Ionisationszeitpunkte mit steigender Intensität im Laserpuls nach vorn wandert (siehe Abb. 4.10(a-

b)). Aufgrund des veränderlichen Winkels zwischen  $\mathbf{E}$  und  $\mathbf{A}$ -Feld in der Laserpulseinhüllenden (siehe Kap.4.4.6.1) führt diese Verschiebung der Ionisation zu einer starken Änderung des Elektronenemissionswinkels (siehe Abb. 4.10 (c)).

Der zeitliche Verlauf der Ionisationswahrscheinlichkeit im Laserpuls für das He<sup>+</sup> kann durch die Lösung der Ratengleichungen [125; 83]

$$\frac{dP_{He^+}}{dt} = -\Gamma_{He^+ \Rightarrow He^{2+}}(t)P_{He^+}(t) \quad (4.7)$$

$$\frac{dP_{He^{2+}}}{dt} = \Gamma_{He^+ \Rightarrow He^{2+}}(t)P_{He^+}(t) \quad (4.8)$$

berechnet werden, wenn entsprechende Ionisationsraten  $\Gamma$  bekannt sind. An dieser Stelle wird die in Kap.2.4 vorgestellte ADK-Rate genutzt. Da die ADK-Rate die Ionisationswahrscheinlichkeit bei hohen Feldstärken nahe der Barrier-Suppression-Ionisation überschätzt, schlagen Tong und Lin [126; 127] eine Korrektur der Rate über

$$\Gamma(t) = \Gamma_{TBI}(t)\Gamma_{nlm}(t) \quad (4.9)$$

mit einem Korrekturfaktor

$$\Gamma_{TBI} = \exp\left(-\alpha \frac{2Z}{\kappa^2} \frac{|F|}{\kappa^3}\right) \quad (4.10)$$

vor. Das Ionisationspotential  $I_p$  des Atoms geht über  $\kappa = \sqrt{2I_p}$  ein. Der Parameter  $\alpha$  hängt dabei von der Magnetquantenzahl ab und beträgt für das He<sup>+</sup>  $\alpha=6$ .

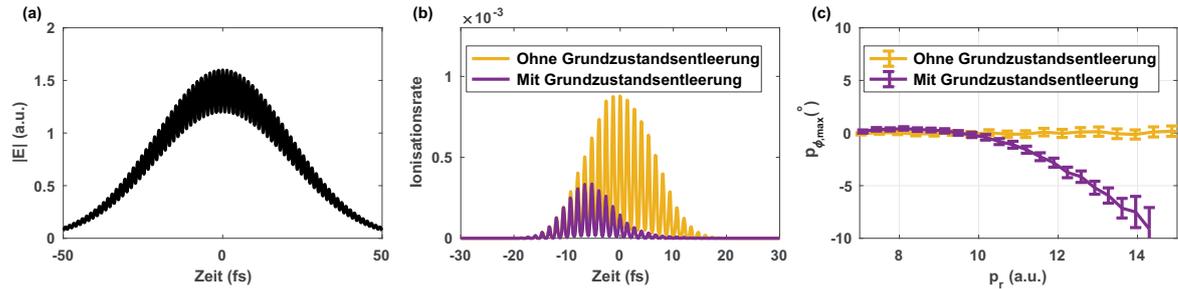


Abbildung 4.10: Grundzustandsentleerung: (a) Betrag der elektrischen Feldstärke für einen elliptisch polarisierten 35 fs Laserpuls mit einer maximalen Intensität von  $2 \cdot 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>. In (b) ist die berechnete Ionisationsrate für diesen Laserpuls für He<sup>+</sup> unter Vernachlässigung und mit Berücksichtigung der Grundzustandsentleerung gezeigt. Mit Grundzustandsentleerung ist die Ionisation in der ansteigenden Flanke des Laserpulses gesättigt und der Schwerpunkt der Ionisation liegt einige Femtosekunden vor dem Pulsmaximum. Die effektive Intensität der Ionisation ist damit deutlich geringer als die maximale Intensität des Laserpulses. (c) Ergebnisse für den  $p_r$ -abhängigen Elektronenemissionswinkel  $p_{\phi, \max}$  der CTMC-Simulation unter Berücksichtigung der Grundzustandsentleerung.

In Abb. 4.10 (b) ist die Verteilung der Ionisationszeiten für einen Laserpuls hoher Intensität dargestellt. Wird die Grundzustandsentleerung nicht beachtet, folgen die Ionisationszeiten den Maxima der Laserfeldoszillation und erstrecken sich über die gesamte Pulslänge. Bei Beachtung der Grundzustandsentleerung ist die Ionisation schon vor dem Maximum des Laserpulses abgeschlossen und die Ionisationszeiten konzentrieren sich in der ansteigenden Flanke des Laserpulses. Dort wird die Elektronenemissionsrichtung durch den Effekt der Einhüllenden (siehe Kap. 4.4.6.1) bestimmt, sodass die Grundzustandsentleerung direkt die beobachtete Verdrehung der Elektronenverteilungen beeinflusst (siehe Abb. 4.10 (c)).

Gegenüber der Vorhersage des einfachen Simple-Man-Modells wird durch die Grundzustandsentleerung der Winkel  $p_{\phi, \max}$  beginnend ab einer Intensität von  $\approx 1,2 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$  abgesenkt. Da die Ionisationszeiten im Puls zu früheren Zeiten verschoben werden, verändert sich der Winkel in negativer Richtung, d.h. entgegen der Rotationsrichtung des Feldes.

#### 4.4.6.3 Coulomb-Interaktion

Die Beziehung  $\mathbf{p} = -\mathbf{A}(t_0)$  kann auf die Erhaltung des kanonischen Impulses zurückgeführt werden, die jedoch nur gilt, wenn die Summe der externen Kräfte verschwindet. Bei genauer Betrachtung findet die Bewegung des Elektrons im kombinierten Potential des Laserfeldes und des Coulomb-Potentials des zurückbleibenden Ions statt. Die Coulomb-Interaktion ruft dabei nur eine kleine Änderung der Elektronentrajektorie hervor. Da vor allem der Emissionswinkel des Elektrons verändert wird (siehe Abb. 4.11 (a)), muss die Coulomb-Interaktion für eine Attoclock-Messung berücksichtigt werden [104].

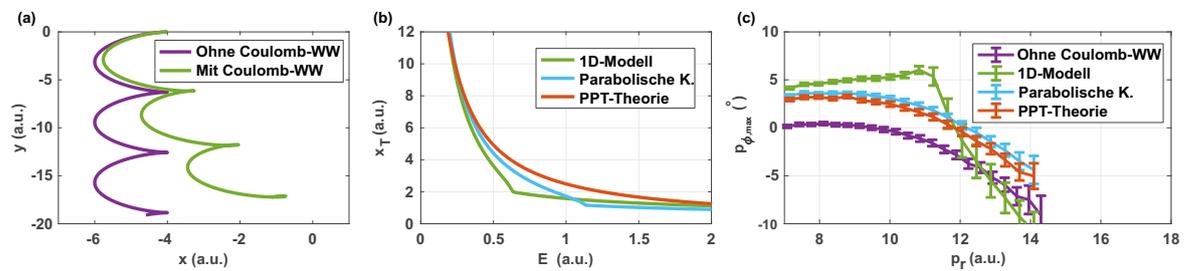


Abbildung 4.11: Coulomb-Interaktion: (a) Beispiel einer Trajektorie eines Elektrons nach der Ionisation in einem zirkular polarisierten Laserfeldes bei Vernachlässigung und unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung mit dem verbleibendem Ion. Die Position des Ions in der Abbildung ist bei (0,0). (b) Der Abstand des Startortes bzw. Tunnelausganges des Elektrons vom Ausgangsion in Abhängigkeit der Feldstärke für verschiedene Tunnelgeometrien für die Ionisation von He<sup>+</sup>. (c) Ergebnisse für den  $p_r$ -abhängigen Elektronenemissionswinkel  $p_{\phi, \max}$  der CTMC-Simulation unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung im Vergleich für den Tunnelausgang in parabolischen Koordinaten und nach PPT-Theorie. Für den PPT-Ansatz wurde in diesem Abschnitt zwar wie für parabolischen Koordinaten die Breite der Anfangsimpulsverteilung berücksichtigt, aber noch nicht die nichtadiabatische Verschiebung des Anfangsimpulses.

In der CTMC wird für jede mögliche Elektronentrajektorie die Bewegungsgleichung im kombinierten Feld des Lasers und des Coulomb-Potentials gelöst. Entscheidend ist die Wahl der Startbedingungen, insbesondere des Tunnelausganges als Startort der Bewegung. Die Position kann entsprechend der in Kap. 2.3 sowie 2.6 beschriebenen Ansätze auf verschiedene Weise ermittelt werden. Die feldstärkenabhängige Position der Tunnelausgänge ist in Abb. 4.11 (b) dargestellt. Grundsätzlich zeigt sich dabei für alle Berechnungsvarianten ein ähnlicher Verlauf. Je höher die Feldstärke, desto stärker wird das Atompotential verformt und desto näher rückt die Startposition des Elektrons an das Coulomb-Potential des Atoms heran.

Dennoch nimmt die Coulomb-Korrektur der Elektronentrajektorie für höhere Feldstärken nicht zu (siehe Abb. (c)). Da eine höhere Feldstärke das Elektron ebenfalls stärker vom Atom weg beschleunigt, ist die Stärke der Coulomb-Korrektur nahezu feldstärkenunabhängig.

Die Ergebnisse der CTMC bei Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung für den  $p_r$ -abhängigen Elektronenemissionswinkel für He<sup>+</sup> sind in Abb. 4.11 (c) für die Berechnung des Tunnelausgangs in eindimensionaler Betrachtung, in parabolischen Koordinaten und nach der nichtadiabatischen PPT-Theorie gezeigt. Für alle Versionen gilt gegenüber der Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung, dass der Emissionswinkel größer und damit in Rotationsrichtung des Feldes verschoben wird.

Die Berechnung des Tunnelausgangs in eindimensionaler Betrachtung führt zu einer stärkeren Ablenkung, da der Tunnelausgang deutlich näher am Atom liegt. Das Maximum bei  $p_r \approx 11$  a.u. ist eine Folge des Einsetzens des Over-Barrier-Ionisations-Regimes (siehe Kap. 2.5). Daraus folgt eine Änderung der Startposition des Elektrons nach der Ionisation (siehe Abb. (b)), die dann durch die Position des Maximums der Barriere beschrieben wird.

Sowohl für die Berechnung des Tunnelausgangs in parabolischen Koordinaten als auch nach der nichtadiabatischen PPT-Theorie zeigen die Elektronenemissionswinkel in (c) nur geringe Unterschiede. Da der Tunnelausgang in parabolischen Koordinaten etwas näher am Atom liegt, folgt eine geringfügig stärkere Coulomb-Korrektur im Vergleich zum PPT-Modell. Ein Maximum wie bei der eindimensionalen Betrachtung tritt nicht auf, da bei Betrachtung des Tunnelproblems in parabolischen Koordinaten die Over-Barrier-Ionisation erst bei höheren Intensitäten relevant wird und aufgrund der Sättigung der Ionisation einen geringeren Einfluss auf den beobachteten Elektronenemissionswinkel  $p_{\phi, \max}$  hat [104].

Die transversale Anfangsgeschwindigkeitsverteilung wurde entsprechend Kap. 2.3 berücksichtigt, zeigt jedoch keinen Einfluss auf den in Abb. 4.11 (c) analysierten Winkel.

#### 4.4.6.4 Nichtadiabatische Effekte

Die semiklassischen Simulationen in den vorangegangenen Kapitel basierten auf einer quasistatischen Theorie der Tunnelionisation (siehe Kap. 2.3). Oftmals wurden die Experimente zur Attoclock jedoch in dem Übergangsbereich zwischen Multiphotonen- und Tunnelionisation bei  $\gamma \approx 1$  durchgeführt, in dem der Tunnelionisationsvorgang durch diese Theorie nicht exakt beschrieben werden kann, sondern durch nichtadiabatische Effekte beeinflusst wird (siehe Kap. 4.3).

Wie bereits in Kap. 4.3 diskutiert, erschweren nichtadiabatische Effekte die Interpretation der Attoclock-Experimente, da für elliptische und zirkulare Felder eine zusätzliche Änderung der Impulse des Elektrons auftritt. Wie Yakaboylu *et al.* beschreiben, kann diese Impulsänderung als Tunnelzeit interpretiert werden, sie ist aber keine Tunnelzeit im Sinne einer Wigner-Zeit (siehe Kap. 4.1) [101; 98].

Bei nichtadiabatischer Behandlung tritt ein Energiegewinn des Elektrons während des nichtadiabatischen Tunnelprozesses auf [27; 42] (siehe Kap. 2.6). Dafür ergeben sich entsprechend der zwei Grenzfälle der Ionisation zwei verschiedene, aber äquivalente Erklärungen (siehe Abb. 4.12 (d)) [43]. Die Energieaufnahme kann als virtuelle Absorption von Photonen interpretiert werden, die Energie der Wellenfunktion verändert und somit die Ionisationswahrscheinlichkeit erhöht [44].

In einem anderen Bild beschreiben Klaiber *et al.* die Energieaufnahme während des Tunnelprozesses mit Hilfe klassischer Mechanik [43]. Dabei folgt der Gewinn der Energie des Elektrons aus der Bewegung in der sich zeitlich veränderlichen Barriere. Die entscheidende Zeitskala kann wieder über die Keldysh-Zeit  $\tau_k \sim \gamma/\omega$  abgeschätzt werden, sodass der Effekt vom Wert

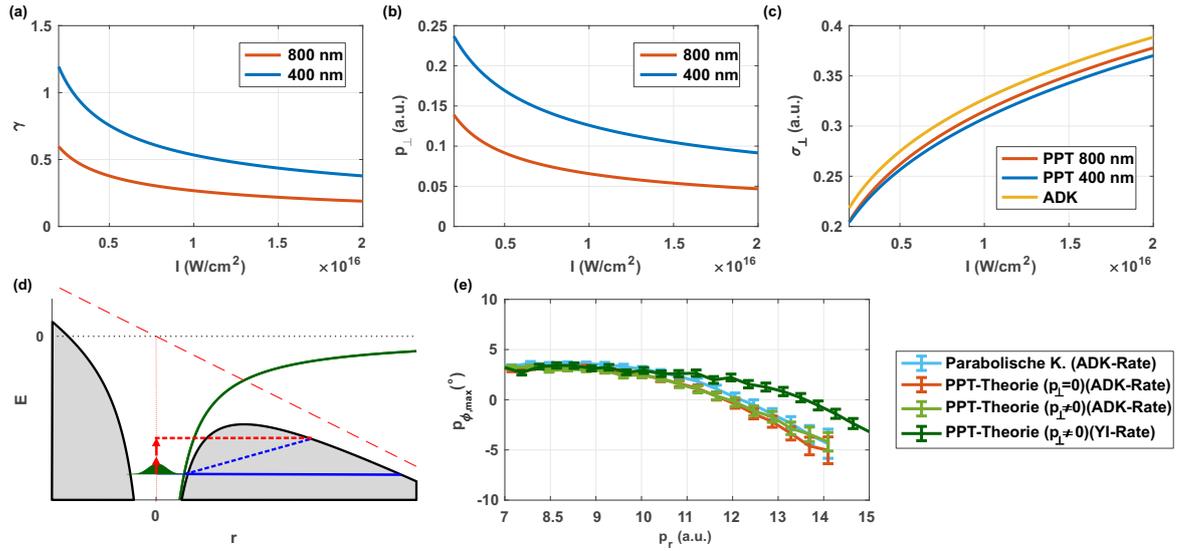


Abbildung 4.12: Nichtadiabatische Effekte: (a) Keldysh-Parameter  $\gamma$  für den relevanten Intensitätsbereich für die Ionisation von He<sup>+</sup> mit 800 nm und 400 nm-Laserpulsen, (b) berechneter Beitrag der Anfangsgeschwindigkeit  $p_{\perp}$  nach PPT-Theorie für die Ionisation von He<sup>+</sup>, (c) zum Vergleich die Breite  $\sigma_{\perp}$  der Anfangsgeschwindigkeitsverteilung, (d) Die nichtadiabatische Ionisation in einem zirkular polarisierten Laserfeld kann als Absorption von Photonen und danach folgender Tunnelionisation mit höherer Energie (rote gestrichelte Linie) oder als Energiegewinn des Elektrons während der Bewegung in der Tunnelbarriere interpretiert werden [43]. Die blaue Linie zeigt den adiabatischen Fall der Tunnelionisation. (e) Ergebnisse für den  $p_r$ -abhängigen Elektronenemissionswinkel  $p_{\phi, \max}$  der CTMC-Simulation unter Berücksichtigung der nichtadiabatischen Effekte des veränderten Startimpulses ( $p_{\perp} \neq 0$ ) sowie bei Verwendung der Yudin-Ivanov-Rate.

des Keldysh-Parameter abhängt und im adiabatischen Grenzfall verschwindet.

Im Fall elliptischer Laserpolarisation folgt der Energiegewinn aus der Interaktion mit der transversalen Feldkomponente des rotierenden elektrischen Feldes und führt zu einer senkrechten Anfangsgeschwindigkeit, die eine zusätzliche longitudinale Komponente zu dem Driftimpuls hinzufügt [128; 43]. Dies ergibt sich aus der in Kap. 2.7 beschriebenen Beobachtung für elliptisch polarisierte Laserfelder, dass die Tunnelionisation entlang des elektrischen Feldes an den Maxima der Oszillation stattfindet, aber der Driftimpuls in Richtung des Vektorpotentials und damit senkrecht zum elektrischen Feld ausgerichtet ist.

Um den Einfluss der nichtadiabatischen Korrekturen für das System des He<sup>+</sup> abzuschätzen, kann die CTMC-Simulation in zwei Schritten auf die nichtadiabatische Theorie erweitert werden. Neben dem in Kap. 4.4.6.3 diskutierten Startort der Elektrontrajektorie wird dazu die Verschiebung der senkrechten Anfangsgeschwindigkeit  $p_{\perp}$  berücksichtigt (siehe Kap. 2.6). Die Geschwindigkeit aus der nichtadiabatischen PPT-Theorie ist in Abb. 4.12 (b) dargestellt. Die Elektronen starten am Tunnelausgang mit einem Anfangsimpuls in transversaler Richtung, also senkrecht zur Hauptachse der Polarisationsellipse des elektrischen Feldes, die den Wert  $p_{\perp} = \frac{\epsilon E}{\omega} \left( \frac{\sinh \tau_0}{\tau_0} - 1 \right)$  annimmt (siehe Kap. 2.6) [45; 41]. Die Verteilung der Anfangsgeschwindigkeiten weist eine Breite von  $\sigma_{PPT} = \sqrt{\frac{\omega}{2\tau_0 \left[ 1 + \left( \frac{\tau_0 - \tanh \tau_0}{\tau_0 \tanh \tau_0} \right) \right]}}$  auf. Beide Größen hängen über

$\tau_0$  von der Keldysh-Zeit<sup>1</sup>  $\tau_k \sim \gamma/\omega$  ab (siehe Abb. 4.12 (b)).

Ein Vergleich dieses zusätzlichen Impulsbetrages mit der senkrechten Anfangsgeschwindigkeitsverteilung  $\sigma_\perp$  ergibt, dass für He<sup>+</sup> bei einer Laserwellenlänge von 800 nm der zusätzliche Impuls klein gegen die Breite der Anfangsgeschwindigkeit der Elektronen nach der Tunnelionisation ist (siehe (c)). Dem niedrigen Keldysh-Parameter  $\gamma$  (siehe (a)) entsprechend, bleibt der Einfluss dieser Geschwindigkeitskomponente ( $p_\perp \neq 0$ ) auf die simulierten Elektronenemissionswinkel  $p_{\phi,\max}$  daher sehr gering, wie in Abb. (e) erkennbar ist. Hierbei ist anzumerken, dass an dieser Stelle noch die adiabatische Ionisationsrate (ADK-Rate) (siehe 2.4) genutzt wurde.

Zusätzlich ist es möglich, eine nichtadiabatische Ionisationsrate für die Berechnung der Ionisationszeiten zu verwenden, um eine konsistente Beschreibung vorzunehmen. Dazu wird die nichtadiabatische Yudin-Ivanov-Rate (YI-Rate) implementiert (siehe Kap. 2.6), die auf der PPT-Theorie basiert. In Abb. (e) wird deutlich, dass die Verwendung dieser Rate einen größeren Einfluss auf das Simulationsergebnis zeigt. Für hohe  $p_r$  und damit für hohe Feldstärken werden damit größere Winkel als mit der ADK-Rate beobachtet.

Einerseits wird an dieser Stelle deutlich, dass auch die Ionisationsrate einen Einfluss auf den simulierten Emissionswinkel  $p_{\phi,\max}$  des Attoclock-Experimentes hat, obwohl bisher in der Literatur teilweise angenommen wurde, dass die Vorhersagen für den Attoclock-Winkel nicht empfindlich auf die exakte Form der Ionisationsrate sind [104].

Andererseits könnte die Tatsache, dass die ADK- und die PPT-Rate unterschiedliche Simulationsergebnisse erzeugen, auf den ersten Blick als ein nichtadiabatischer Effekt interpretiert werden. Es ist aber zu vermuten, dass die Änderung bei Verwendung der PPT-Rate keine nichtadiabatische Korrektur darstellt, da jene zu einer Erhöhung der Ionisationswahrscheinlichkeit (siehe Kap. 2.6) und so infolge der Sättigung der Ionisation bei niedrigeren Intensitäten eine zusätzliche Verdrehung zu niedrigeren Winkeln bewirken würde. Der beobachtete Unterschied zwischen der ADK- und der YI-Rate lässt sich damit erklären, dass die ADK-Rate die Ionisation bei hohen Feldstärken nicht korrekt beschreibt [127]. Obwohl dies durch einen empirischen Korrekturfaktor von Tong und Lin (siehe Kap. 4.4.6.2) berücksichtigt wurde, ergibt sich eine Veränderung gegenüber der YI-Rate. Zhang *et al.* zeigten kürzlich, dass umfangreichere Korrekturfaktoren der ADK-Rate notwendig sind [129].

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass aufgrund des geringen Keldysh-Parameters in der Ionisation von He<sup>+</sup> mit 800 nm-Laserpulsen die Simulationen auf Basis der adiabatischen und nichtadiabatischen Theorien keine Unterschiede aufzeigen, die eindeutig auf nichtadiabatische Effekte zurückzuführen sind.

#### 4.4.7 Vergleich von CTMC- und TDSE-Simulationen

Die CTMC-Simulationen aus dem Kap. 4.4.6 liefern einen guten Einblick in den Ionisationsprozess und bieten den Vorteil, dass der Einfluss verschiedener Effekte unabhängig voneinander analysiert werden kann. Die trajektorienbasierten Ansätze weisen jedoch den Nachteil auf, dass Annahmen und Approximationen für die Wahl der Anfangsbedingungen notwendig sind [105; 104; 32]. Der Ansatz, die quantenmechanischen Eigenschaften der elektronischen Wellenfunktion auf klassische Trajektorien zu übertragen, birgt die Gefahr, dass diese Eigenschaften unvollständig oder gar inkonsistent beschrieben werden [41].

<sup>1</sup> $\tau_0$  folgt aus der Lösung der Gleichung  $\sinh^2(\tau_0) - \left(\cosh \tau_0 - \frac{\sinh \tau_0}{\tau_0}\right) = \gamma^2$  [35; 45].

Die Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung (TDSE) ist der Ansatz, der alle Effekte in quantenmechanischer Beschreibung exakt und ohne weitere Annahmen oder Approximationen behandeln kann. Für die hohen Intensitäten, die für die Ionisation des He<sup>+</sup> benötigt werden, ist die numerische Lösung der TDSE in voller Dimensionalität jedoch mit der derzeit verfügbaren Rechenleistung nicht umsetzbar. Daher muss auf eine zweidimensionale Behandlung der TDSE in Dipolapproximation zurückgegriffen werden (siehe Kap. 2.1).

Die im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen experimentellen Resultate werden im Folgenden mit Ergebnissen zweidimensionaler TDSE-Simulationen verglichen, die von Dr. Hongcheng Ni aus der Arbeitsgruppe von Prof. Jan-Michael Rost (Max-Planck-Institut Physik komplexer Systeme Dresden) bereitgestellt wurden [115]. Die Simulationen wurden für verschiedene Laserintensitäten durchgeführt und sind wie die CTMC über die CEP und das Fokusvolumen gemittelt.

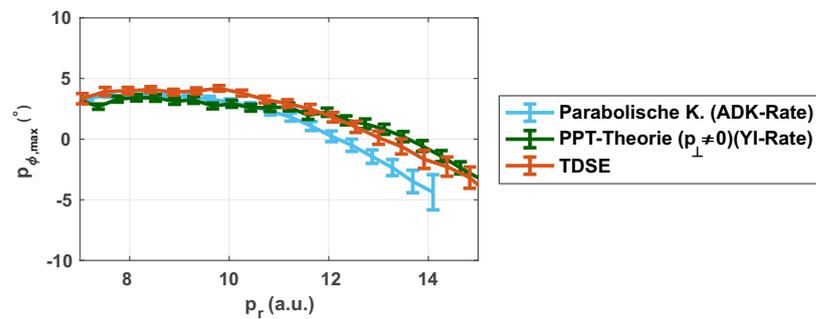


Abbildung 4.13: Vergleich von CTMC und TDSE: Ergebnisse für den  $p_r$ -abhängigen Elektronenemissionswinkel der CTMC-Simulation für die adiabatische Theorie mit parabolischen Koordinaten und für nichtadiabatischen PPT-Theorie ( $p_{\perp} \neq 0$  und Verwendung der Yudin-Ivanov-Rate im Vergleich zu den TDSE-Resultaten.

In Abb. 4.13 ist der Vergleich der Ergebnisse für den  $p_r$ -abhängigen Elektronenemissionswinkel  $p_{\phi, \max}$  aus den CTMC- und TDSE-Simulationen dargestellt. Für den gesamten relevanten  $p_r$ -Bereich sind die auf der PPT-Theorie basierenden CTMC-Simulationen in sehr guter Übereinstimmung mit den TDSE-Ergebnissen. Die Ergebnisse der CTMC für parabolische Koordinaten weichen dagegen für größere Feldstärken stärker von den TDSE-Ergebnissen ab. Dieser Effekt wurde schon im vorangegangenen Kapitel diskutiert und ist nicht auf nichtadiabatische Effekte, sondern vermutlich auf die Unterschiede der Ionisationsraten nahe der Sättigungsintensität zurückzuführen.

#### 4.4.8 Vergleich von Experiment und Simulationen

Abschließend können die Simulationsergebnisse den experimentellen Resultaten gegenübergestellt werden. Der Vergleich der  $p_r$ -abhängigen  $p_{\phi, \max}$ -Winkel aus der TDSE und der CTMC ist zusammen mit den experimentellen Daten in Abb. 4.14 dargestellt.

Für die Auswertung der experimentellen Daten wird die Information über die Lage der Laserpolarisation benötigt. Diese Information wird entsprechend der in Kap. 4.4.4 vorgestellten Methode ermittelt. Wie bereits diskutiert, ist für die Simulationen die Lage der Polarisation per Konstruktion bekannt, weshalb diese Information zur Validierung der Winkelkalibrierung genutzt werden kann.

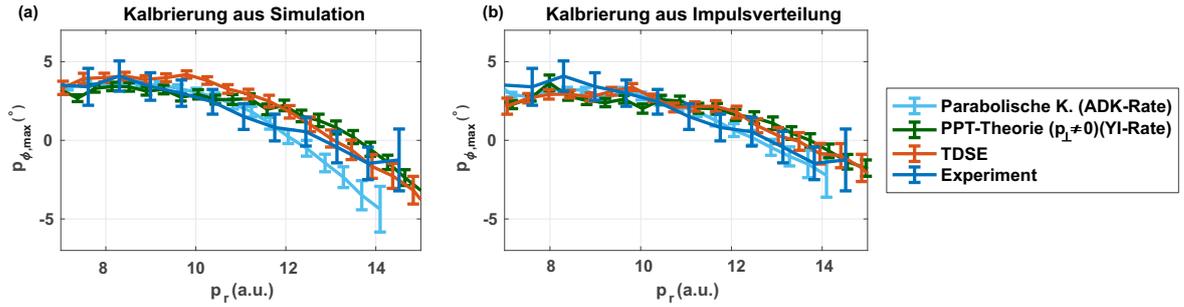


Abbildung 4.14: Vergleich der experimentellen Resultate mit den Ergebnissen von CTMC und TDSE: (a) Der  $p_r$ -abhängige Elektronenemissionswinkel für Experiment und Simulation (siehe Abb. 4.13). Dabei wurde für die CTMC- und TDSE-Resultate die Information über die Laserpolarisation aus den Simulationen übernommen. (b) zeigt die gleichen Daten wie (a), nur für den Fall, dass auch für die Simulationen die Laserpolarisation aus den Impulsverteilungen rekonstruiert wurde (siehe Text). Die Fehlerbalken zeigen das 95%-Konfidenzintervall der Kurvenanpassung zur Ermittlung des wahrscheinlichsten Winkels an.

Aus diesem Grund zeigt die Abbildung die Simulationsergebnisse einmal mit der Kalibrierung der Impulsverteilung über den in der Simulation exakt bekannten Winkel (a) und ein zweites Mal für den Fall, dass auch die Simulationsergebnisse mit der in Kap. 4.4.4 vorgestellten Methode kalibriert wurden (b). Die experimentellen Ergebnisse basieren in (a) und (b) auf der Kalibrierung aus der Impulsverteilung.

Wird auch für die simulierten Impulsverteilungen die Winkelkalibrierung angewendet (b), verschiebt sich die Lage der Polarisation in Richtung der Rotationsrichtung der Laserpolarisation je nach Simulation um  $0,2^\circ$  bis  $0,8^\circ$ . Dies ist der Fehler des Elektronenemissionswinkels, der aus der Bestimmung des Kalibrierungswinkels mit Hilfe der Impulsverteilungen folgt. Die Kurven für den  $p_r$ -abhängigen  $p_{\phi,\max}$ -Winkel verschieben sich dadurch systematisch etwas zu niedrigeren Werten, also näher in Richtung der Lage der rekonstruierten Laserpolarisationsachse. Es ergibt sich dadurch eine etwas bessere Übereinstimmung mit der experimentellen Kurve. Daraus lässt sich schlussfolgern, dass die Kurve der experimentellen Ergebnisse infolge der Kalibrierungsmethode vermutlich um  $0,2^\circ$  bis  $0,8^\circ$  zu niedrige Winkel anzeigt. Der Vergleich zeigt dennoch, dass die Ergebnisse nur wenig von der Kalibrierung abhängen und trotz der genutzten Methode eine gute Interpretation der  $\text{He}^+$ -Daten möglich ist.

Insgesamt kann für  $\text{He}^+$  eine gute Übereinstimmung der experimentell ermittelten Elektronenemissionswinkel mit den entsprechenden über die TDSE- und CTMC simulierten Ergebnissen festgestellt werden. Es kann abgeleitet werden, dass auch die semiklassischen Simulationen die wesentlichen Aspekte der Dynamik beinhalten. Entscheidend ist die Tatsache, dass die semiklassischen Simulationen keine Tunnelzeit berücksichtigen.

Aus den Resultaten, die in dieser Arbeit für das Einelektronensystem des  $\text{He}^+$ -Ions – und somit an einem der Theorie gut zugänglichen System – in elliptisch polarisierten Laserfeldern gewonnen wurden, folgt, dass innerhalb der Genauigkeit ( $\approx 1^\circ$ ) der hier durchgeführten Auswertungen keine Hinweise auf eine endliche Tunnelzeit identifiziert werden können. Für das  $\text{He}^+$  kann durch den niedrigen Keldysh-Parameter von  $\gamma \approx 0,3 - 0,2$  sichergestellt werden, dass die Tunnelionisation der dominierende Ionisationsmechanismus ist. Dieser Wert ist deutlich geringer als der niedrigste bisher in einem Experiment erreichte Wert von  $\gamma \approx 1,3 - 0,55$  [104], der sich auf eine Untersuchung des Heliumatoms, also einem Mehrelektronensystem, bezieht.

## Kapitel 5

# Doppelionisation von Helium in ultrakurzen Laserpulsen

*Die Doppelionisation von Helium in intensiven, elliptisch polarisierten Laserfeldern wird mit einem Experiment und mit detaillierten semiklassischen Simulationen analysiert. Im Gegensatz zu einer Reihe von anderen Experimenten [130; 131; 132], die den sequentiellen Ablauf der Doppelionisation in elliptisch polarisierten Laserfeldern in Frage gestellt haben, wird in der vorliegenden Arbeit eine bemerkenswert gute Übereinstimmung eines auf rein sequentieller Ionisation basierenden Modells mit experimentellen Daten beobachtet.*

### 5.1 Einleitung

Im Rahmen der Quantenmechanik wurden viele Eigenschaften von Atomen für Einelektronensysteme wie das Wasserstoffatom oder das, im vorangegangenen Kapitel diskutierte, Helium-Ion  $\text{He}^+$  behandelt. Die Untersuchung von Systemen mit zwei Elektronen und der sich daraus ergebenden Komplexität der theoretischen Beschreibung ist der nächste fundamentale Aspekt für das Verständnis der Quantenmechanik.

Die lichtinduzierte Emission beider Elektronen, die Doppelionisation, des Heliumatoms stellt einen grundlegenden Benchmark-Prozess für die Wechselwirkung von Licht mit Materie in komplexeren Systemen dar.

Für die laserinduzierte Doppelionisation können zwei Mechanismen unterschieden werden [133]. Der erste Prozess ist die nichtsequentielle Doppelionisation (NSDI). Im engeren Sinne wird in der Starkfeld-Laserphysik darunter der Effekt verstanden, dass ein Elektron, welches im Laserfeld durch Tunnelionisation aus dem Atom gelöst wird, danach durch das Laserfeld in Richtung des Ursprungsatoms beschleunigt werden und dann mit diesem kollidieren kann. Neben der elastischen Streuung dieses Elektrons oder der Rekombination mit dem Ion unter Aussendung von Photonen kann es dabei zum Herausschlagen eines weiteren Elektrons kommen [7; 19; 134].

Die Trajektorie des Elektrons wird dabei durch das zeitabhängige Laserfeld kontrolliert, sodass der NSDI-Prozess durch die Eigenschaften des Laserpulses wie der Pulsdauer und der Carrier-Envelope-Phase (CEP) entscheidend beeinflusst werden kann [135; 136]. Wichtig für die Wahrscheinlichkeit eines Kollisionsprozesses ist auch der Polarisationszustand des Feldes. NSDI wird nur für weitgehend linear polarisiertes Laserlicht beobachtet. Charakteristisch für

NSDI ist der von L’Huillier gemessene Verlauf der intensitätsabhängigen Ionisationsrate doppelt ionisierter Ionen, der bei niedrigen Intensitäten eine unerwartet hohe Zählrate aufweist und die Korrelation der Elektronenemission in NSDI verdeutlicht [18; 19].

Der zweite Mechanismus der Doppelionisation ist die sequentielle Doppelionisation (SDI). Sie ist bei hohen Intensitäten des Laserfeldes und vor allem für elliptisch polarisierte Laserfelder, bei denen NSDI unterdrückt ist, der dominante Prozess. Bei der SDI wird das zweite Elektron, genau wie das erste Elektron, durch einen zweiten Tunnelionisationsschritt aus dem Ion gelöst. Nach der Emission des ersten Elektrons und der Relaxation des Ions in seinen Grundzustand ist das zweite Elektron deutlich fester gebunden und weist damit ein höheres Ionisationspotential auf. Der zweite Ionisationsschritt erfordert eine höhere Laserintensität, die erst später im Laserpuls erreicht wird, sodass die zweite Elektronenemission zeitlich deutlich nach der Emission des ersten Elektrons stattfindet.

In der Annahme, dass es sich um zwei *unabhängige* Ionisationsschritte handelt, wird diese Form der Doppelionisation als sequentielle Ionisation bezeichnet. Jedoch stellt sich die Frage, ob es, z.B. wenn bei Verwendung extrem kurzer Laserpulse beide Ionisationsprozesse in ein enges Zeitfenster gezwungen werden, Abweichungen von dieser Annahme gibt und somit ein Anteil von *korrelierter sequentieller* Doppelionisation<sup>1</sup>, also nichtsequentieller Ionisation im weiteren Sinne, existiert.

Eine mögliche Ursache für Korrelationseffekte in SDI ist, dass das Ion vor der zweiten Ionisation nicht vollständig in den Grundzustand relaxiert ist. Die Emission des ersten Elektrons kann eine Anregung der verbleibenden Elektronen und eine daraus folgende Neuordnung in der Elektronenhülle hervorrufen [137]. Dies konnte durch Fleischer *et al.* experimentell nachgewiesen werden, indem sie in einem Pump-Probe-Experiment die Entwicklung der Emissionsrichtung des zweiten emittierten Elektrons in Abhängigkeit der Zeit zwischen beiden Ionisationsschritten untersuchten [130].

Pfeiffer *et al.* verglichen die gemessenen intensitätsabhängigen Impulsverteilungen in SDI von Neon mit semiklassischen Simulationen. Sie kamen zu dem Schluss, dass die Ionisationszeiten sich nicht mit einem sequentiellen Ionisationsmodell reproduzieren lassen und die Emissionsrichtung der Elektronen im Widerspruch zur Approximation der unabhängigen Elektronenemission stehen [85; 138; 139; 140].

Eine andere Möglichkeit für Elektronenkorrelation in der SDI wäre, dass sich die beiden emittierten Elektronen wechselseitig in ihren Trajektorien als Folge der Coulomb-Abstoßung beeinflussen. Es konnte jedoch von Emmanouilidou *et al.* in Simulationen gezeigt werden, dass dieser Effekt keine Rolle spielt und selbst für sehr kurze Pulse vernachlässigt werden kann [141]. In diesem Kapitel werden zwei unterschiedliche Ansätze zur Untersuchung der Doppelionisation von Helium und möglicher Korrelation in diesem Prozess diskutiert. Der erste Ansatz beruht auf der Verwendung der Ionenstrahlapparatur und beschreibt die Möglichkeit der Neutralisation der Ionen für mögliche Experimente zur Untersuchung der SDI. Im zweiten Abschnitt des Kapitels werden die Ergebnisse einer COLTRIMS-Messung für die Doppelionisation von Helium mit Few-Cycle-Laserpulsen vorgestellt und mit Hilfe semiklassischer Simulationen analysiert und interpretiert.

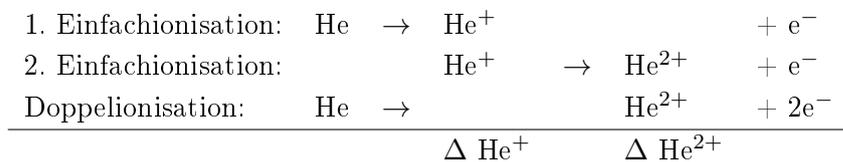
<sup>1</sup>In dieser Arbeit wird die Bezeichnung der sequentiellen Doppelionisation weiter verwendet, obwohl der Begriff voraussetzt, dass es sich um zwei unabhängige Ionisationsschritte handelt.

## 5.2 Messung der Doppelionisation neutraler Atome mit dem Ionenstrahlaufbau

### 5.2.1 Einleitung

Zur Identifikation von Korrelationen in der SDI wäre ein idealer Ansatz, die Einfachionisation eines Atoms, die Doppelionisation und schließlich auch die Einfachionisation des einfach geladenen Ions, welches als Zwischenprodukt der Doppelionisation auftritt, in der gleichen Messapparatur vermessen zu können. Nur dann können die exakt gleichen Bedingungen für die Messung aller Prozesse sichergestellt werden. Dies ist notwendig, da bekannt ist, dass Korrelationseffekte bestenfalls kleine Veränderungen des Messsignals zur Folge haben, während die Ionisationsdynamik viel stärker von verschiedenen experimentellen Parametern abhängig ist.

Bezogen auf die Doppelionisation des Heliumatoms sind dies die folgenden drei Prozesse:



Die Frage ist, ob zwischen diesen Prozessen eine Differenz  $\Delta\text{He}^+$  oder  $\Delta\text{He}^{2+}$  existiert, die in der Ionisationsstärke oder den Impulsverteilungen der Ionen oder Elektronen gemessen werden kann.

Um basierend auf dieser Fragestellung ein Experiment durchzuführen, wurde ein experimenteller Ansatz getestet, der es ermöglichen soll, mit der in Kap. 3.1 vorgestellten Ionenstrahlapparatur neben Ionen neutrale Atome für Starkfeldexperimente zu nutzen.

Dazu wurde eine Ladungsaustauschzelle entwickelt, die einen Ionenstrahl in einen Strahl neutraler Atome umwandelt. Dieses Projekt wurde im Rahmen der Bachelorarbeit von Lukas Wolf umgesetzt [142] und soll daher hier nur zusammengefasst werden.

In der Literatur finden sich viele Beispiele für Experimente, in denen die Neutralisation von Ionen und die Wirkungsquerschnitte der Reaktionen in Stoßexperimenten mit Atomen systematisch untersucht wurden [143; 144]. Die Verwendung neutralisierten Atomstrahlen ermöglichte beispielsweise die spektroskopische Untersuchung von exotischen kurzlebigen Molekülen wie Heliumhydrid oder dreiatomigen Wasserstoff [74].

### 5.2.2 Ionenstrahlaufbau mit Ladungsaustauschzelle

Um mit dem Ionenstrahlaufbau einen Strahl neutraler Atome zu erzeugen, wurde eine Ladungsaustauschzelle entwickelt, die es ermöglicht, den Ionenstrahl mit dem Dampf von Alkaliatomen zu neutralisieren. Der Ladungsaustauschprozess entspricht dabei dem Übergang eines gebundenen Valenzelektrons des Alkaliatoms in die Elektronenhülle des wechselwirkenden Ions.

Die Wahrscheinlichkeit für einen Ladungsaustauschprozess hängt von den Bindungsenergien der beteiligten Zustände des Atoms und Ions ab, sowie von der Geschwindigkeit der Stoßpartner [145]. Alkaliatome, insbesondere Cäsium, sind aufgrund ihrer schwach gebundenen

Valenzelektronen gut für Ladungsaustauschreaktionen geeignet und haben eine große Bedeutung für Neutralisationsexperimente und in der Erzeugung negativ geladener Ionen [143]. Es ist jedoch zu beachten, dass durch die Neutralisation von Ionen mit Alkalidampf Atome in metastabilen Rydberg-Zuständen erzeugt werden können, da der Ladungsaustausch zwischen den Zuständen in z.B. Cäsium ( $I_P = 3.89 \text{ eV}$ ) und den Rydberg-Zuständen nur eine geringe Änderung der Bindungsenergie zur Folge hat und damit bevorzugt abläuft.

Der Aufbau der in dieser Arbeit entwickelten Ladungsaustauschzelle ist in Abb. 5.1 (a) dargestellt. Die Konstruktion der Zelle orientiert sich an Beispielen aus der Literatur [146; 145] und berücksichtigt dabei die besonderen Anforderungen an das Ionenstrahlexperiment.

So sollte eine möglichst effiziente Neutralisierung des Ionenstrahl stattfinden, um genügend neutrale Atome für die Laserwechselwirkung zur Verfügung zu stellen. Gleichzeitig muss der erzeugte Alkalidampf räumlich konzentriert bleiben, um zu verhindern, dass das Vakuum in der Anlage negativ beeinflusst wird. Auch wurde die Zelle so konzipiert, dass sie ohne ein Belüften der Vakuumanlage befüllt werden kann. Die Ampulle mit dem Alkalimetall wird auf die Halterung der Zelle aufgesetzt, sodass nach leichtem Erwärmen das flüssige Alkalimetall durch die rohrartige Verbindung in die Zelle gelangen kann (siehe Abb. 5.1 (a-b)).

Im Betrieb wird die Temperatur in der Zelle über einen außen an der Zelle befestigten Heizdraht erhöht und über einen Temperatursensor gemessen, sodass eine Regelung der Heizleistung für eine zeitlich stabile Temperatur möglich ist. Das Alkalireservoir ist ein Kupferkörper, der eine gleichmäßige Temperaturverteilung gewährleistet. Im oberen Teil der Zelle soll sich ein Temperaturgradient ausbilden, damit der Alkalidampf kondensiert und wieder in das Reservoir zurückgeführt und am Ausströmen aus der Zelle gehindert wird. Die Öffnungen für den Ionenstrahl haben eine Öffnung von 2 mm. Die Länge der Interaktionszone zwischen Alkalidampf und Ionenstrahl beträgt 27 mm.

Die Zelle wurde in ein Vakuumkreuz nach dem Wienfilter und nach dem letzten elektrostatischen Deflektoren (siehe Abb. 3.1) installiert, da neutrale Atome nicht mehr durch elektrostatische Felder kontrolliert werden können.

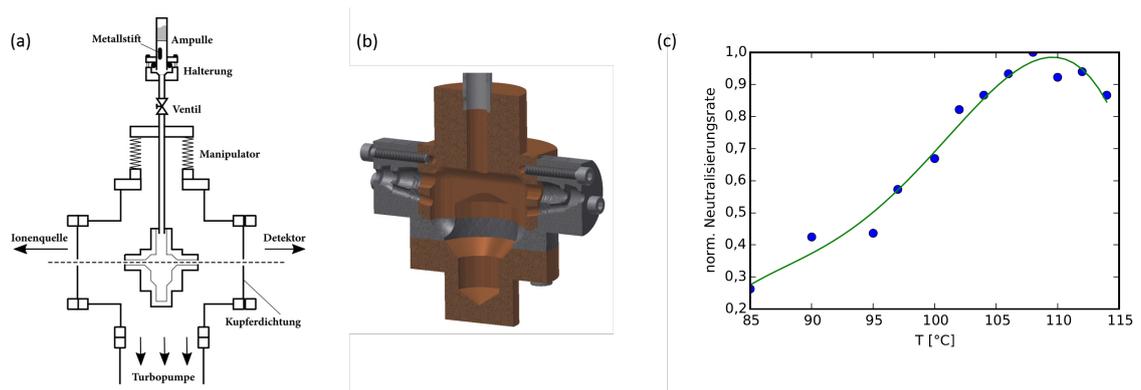


Abbildung 5.1: Aufbau und Funktion der Ladungsaustauschzelle: (a) Schematischer Aufbau der Neutralisationszelle, (b) Schnitt durch die Zelle, (c) Normierte Neutralisationsrate für Helium in Abhängigkeit der Temperatur der Zelle [142].

### 5.2.3 Ergebnisse für die Neutralisation von Ionen

Um die Neutralisation des Ionenstrahls mit Hilfe der im vorangegangenen Kapitel vorgestellten Ladungsaustauschzelle zu charakterisieren, wurde die Intensität des erzeugten neutralen Atomstrahls in Abhängigkeit der Temperatur der mit Cäsium befüllten Zelle bestimmt [142]. Die Intensität des neutralen Strahls kann dabei nur relativ über die detektierte Helligkeit auf einem Phosphorschirm oder den Strom an einem Faradaybecher, der durch das Herausschlagen von Elektronen durch den Atomstrahl entsteht, bestimmt werden. Der nicht neutralisierte Teil des Ionenstrahls wurde nach der Zelle mit elektrostatischen Deflektoren abgelenkt.

In Abb. 5.1 (c) ist die Neutralisationsrate für Heliumionen dargestellt. Bei etwa  $108^\circ\text{C}$  wurde ein Maximum der Neutralisation beobachtet. Eine weitere Erhöhung der Temperatur sorgt für eine geringere Intensität neutraler Teilchen, was vermutlich mit der Erzeugung von negativen Ionen oder der gestiegenen Divergenz des erzeugten Atomstrahls zu erklären ist. Vergleiche zwischen der erzeugten Helligkeit des Ionenstrahls und des neutralisierten Strahls, weisen darauf hin, dass eine absolute Neutralisation von etwa 60% erreicht wurde.

Ähnliche Ergebnisse konnten für die Neutralisation von Neonionen beobachtet werden. Für beide Atome wurde festgestellt, dass die Divergenz des neutralisierten Strahls im Vergleich zu dem Ionenstrahl erhöht ist. Dies folgt aus der Tatsache, dass der Ladungsaustausch durch Stöße der Wechselwirkungspartner zustande kommt und damit zu einer Richtungsänderung führen kann. Eine höhere Divergenz ist jedoch gleichbedeutend mit einer geringeren Dichte des neutralen Targets für die Wechselwirkung mit den Laserpulsen im Starkfeldexperiment.

### 5.2.4 Starkfeldionisation eines neutralisierten Atomstrahls

Das Ziel des Experiments war es, die Doppelionisation des Heliumatoms und die Einfachionisation des einfach geladenen Heliumions mit dem Ionenstrahlapparat zu untersuchen.

Nachdem gezeigt werden konnte, dass mit Hilfe der Ladungsaustauschzelle der Ionenstrahl neutralisiert werden kann, wurden Ionisationsexperimente mit dem Atomstrahl durchgeführt. Versuche die Doppelionisation mit Helium zu detektieren, waren nicht erfolgreich. Dies lässt sich mit der geringen Targetdichte der neutralen Atome in Verbindung mit der erhöhten Komplexität des Experiments erklären. Im Vergleich zu der Untersuchung von Helium stellt die Doppelionisation von Neon aufgrund der geringeren benötigten Intensität ein einfacher zu realisierendes Experiment dar.

Für die Durchführung des Experiments wurde daher die Doppelionisation von Neon mit elliptisch polarisierten Laserpulsen gewählt. Die gemessenen Impulsverteilungen für Einfach- und Doppelionisation sind in Abb. 5.2 dargestellt. Die verwendeten Laserpulse bei 800 nm entsprechen den Bedingungen aus Kap. 4. Für die Interpretation werden die gemessenen Impulsverteilungen mit den Ergebnissen einfacher semiklassischer Simulationen der Doppelionisation verglichen, die in ausführlicher Form im Kap. 5.3.2 erläutert werden.

Für die Einfachionisation des neutralisierten Neon wird eine gaußförmige Verteilung der Impulse mit geringer Breite gemessen (siehe Abb. 5.2 (a)). Die Impulsverteilung der entsprechenden Doppelionisation (b) zeigt nur eine Verteilung mit zwei Maxima, wie sie typischerweise für die Einfachionisation mit elliptischer Polarisation beobachtet wird (siehe Kap. 4). Für eine Doppelionisation wäre eine Verteilung mit vier separierten Maxima zu erwarten gewesen, die daraus folgen, dass das Ion nach der Doppelionisation aufgrund der Impulserhaltung die

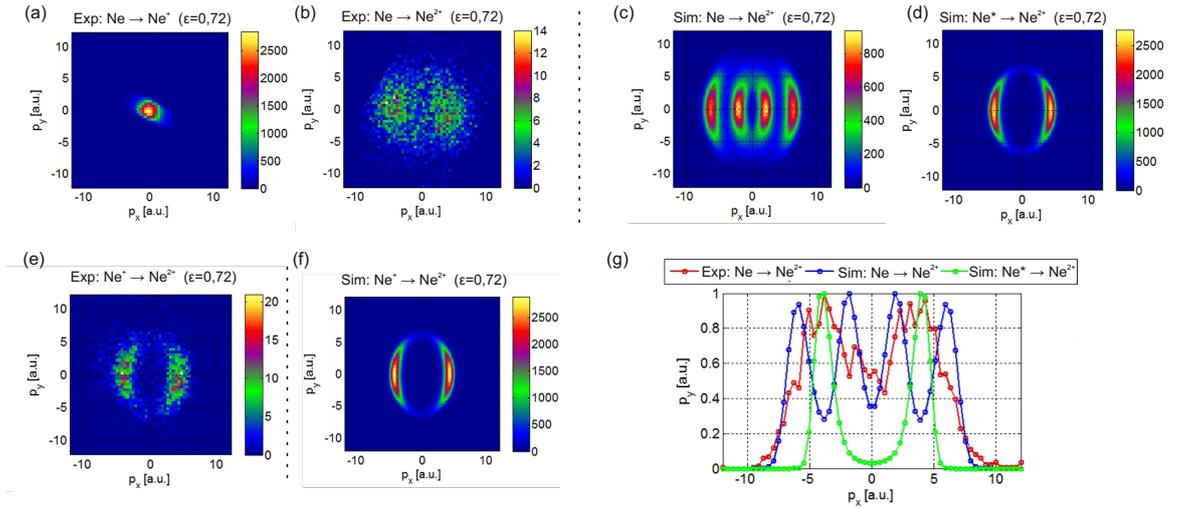


Abbildung 5.2: Gemessene und simulierte Ionenimpulsverteilungen nach Ionisation eines neutralen Neonatomstrahls mit elliptisch polarisierten Laserfeldern ( $\epsilon = 0,72$ ) in der Polarisatensebene: (a) Messung der Einfachionisation von Neonatomen nach Neutralisation, (b) Messung der Doppelionisation von Neonatomen nach Neutralisation, (c) Simulation der Doppelionisation von Neon im Grundzustand, (d) Simulation der Doppelionisation von Neon im angeregten Zustand ( $\text{Ne}^*$ ), (e) Messung der Einfachionisation des nicht neutralisierten Ionenstrahls von  $\text{Ne}^+$ , (f) Simulation für die Einfachionisation von  $\text{Ne}^+$ , (g), Impulsverteilung von (b),(c) und (d) entlang  $p_x$ .

Summe der negativen Impulse der beiden emittierten Elektronen besitzt [83]. Die erwartete Impulsverteilung kann mit der semiklassischen Simulation erzeugt werden (siehe Abb. 5.2 (c)). Die von den Erwartungen abweichenden experimentellen Ergebnisse (siehe Abb. 5.2 (a-c)) legen nahe, dass das neutrale Neonatom sich nicht im Grundzustand befindet, sondern teilweise in einem angeregten Rydberg-Zustand. Die Erzeugung von metastabilen Rydberg-Zuständen in der Neutralisation folgt daraus, dass der Ladungsaustausch zwischen dem Grundzustand in Cäsium ( $I_P = 3.89$  eV) und den Rydberg-Zuständen bevorzugt ist (siehe Kap. 5.2.1). Die dafür in Frage kommenden Zustände sind in Abb. 5.3 dargestellt.

Wird durch Anpassung des Ionisationspotentials ein solcher Zustand als Anfangszustand in der semiklassischen Simulation gewählt, wie in (d) abgebildet, wird eine Impulsverteilung erzeugt, die der gemessenen (b) sehr ähnelt. Damit ist klar, dass in der Messung mit den neutralisierten Atomen im ersten Ionisationsschritt ein Elektron aus einem Rydberg-Zustand mit einem geringen Ionisationspotential und daher bei einer geringen Intensität ionisiert wird. Dieses Elektron und auch das Ion erhalten aufgrund der Verknüpfung zwischen Vektorpotential und Driftimpuls einen viel geringeren Impuls als bei der Ionisation aus dem Grundzustand (siehe Gl. 2.16 bzw. Kap. 2.7).

Der zweite Ionisationsschritt geschieht aus dem Grundzustand des  $\text{Ne}^+$  und führt zu dem erwarteten Impuls. Somit ist der Einfluss des ersten Ionisationsschrittes in der Impulsverteilung (b) kaum erkennbar. Ein Vergleich der Impulsverteilungen in (g) zeigt jedoch, dass die Ausdehnung der gemessenen Impulsverteilung entlang  $p_x$  fast der Breite entspricht, die die Simulation für die Doppelionisation aus dem Grundzustand vorhersagt, während die Position der Maxima mit der Doppelionisation aus dem Rydberg-Zustand übereinstimmt. Daraus kann

Abbildung 5.3: Energiezustände in Neon ausgehend vom Grundzustand im neutralen Neonatom. Zahlreiche Zustände haben eine Energie die nur etwa 3.9 eV von der Ionisierungsenergie entfernt ist und damit einen nahezu resonante Ladungsaustauschreaktion von  $\text{Ne}^+$  und Cäsium ermöglichen.

	Konfiguration	Energie (eV)
$\text{Ne}^+$	$1s^2 2s^2 2p^5$	21,5
-----		
	...	...
	$1s^2 2s^2 2p^5 3d$	20,0
	...	...
	$1s^2 2s^2 2p^5 4s$	19,7
	...	...
	$1s^2 2s^2 2p^5 3p$	18,4
	...	...
	$1s^2 2s^2 2p^5 3s$	16,6
	...	...
Ne	$1s^2 2s^2 2p^6$	0

geschlossen werden, dass der neutralisierte Neonatomstrahl aus einer Mischung von Atomen im Grundzustand und Atomen in angeregten Zuständen besteht.

### 5.2.5 Schlussfolgerung

Durch die Kombination des Ionenstrahlaufbaus zur Impulsspektroskopie mit einer Ladungsaustauschzelle konnte der Bereich der untersuchbaren Targets auf neutrale Atome wie Helium und Neon erweitert werden, die durch eine Ladungsaustauschreaktion der Ionen mit Alkaliatomen erzeugt werden.

Erste Experimente mit intensiven Laserpulsen zeigten, dass der erzeugte neutrale Atomstrahl für Neon aus einer Mischung aus Atomen im Grundzustand und in Rydberg-Zuständen besteht. Damit ergibt sich das Problem, dass Starkfeldexperimente mit neutralen Atomen, die sich ausschließlich im Grundzustand befinden, nicht möglich sind. Mögliche Lösungen wären die Verwendung anderer Atome für die Ladungsaustauschreaktion oder die nachträgliche Abregung der angeregten Zustände durch Stöße mit Gasatomen [147].

Die für Neon beobachtete Erzeugung langlebiger Rydberg-Zustände ist auch für andere Ionen wie  $\text{He}^+$  relevant. Damit stellt sich gerade für Helium die Frage, ob auch verschiedene Zustände von Ortho- und Parahelium erzeugt werden können. Dies würde es ermöglichen, die Abhängigkeit der Starkfeldionisation von Spin-Zuständen des Heliumatoms zu untersuchen.

Auch Systeme wie neutralisierter atomarer Wasserstoff H oder molekularer Wasserstoff  $\text{H}_2$  könnten gebildet werden, da Ionenstrahlen von  $\text{H}^+$  und  $\text{H}_2^+$  sehr gut in der Ionenquelle produziert werden können, sodass interessante fundamentale Testsysteme für weitere Untersuchungen zur Verfügung stehen.

## 5.3 Ionisationdynamik von Helium in Few-Cycle-Laser-Pulsen

### 5.3.1 Einleitung

Für elliptisch polarisierte Laserfelder weisen die Impulsverteilungen der Ionen nach sequentieller Doppelionisation (SDI)<sup>2</sup> eine charakteristische Form auf, die durch vier Maxima der Zählrate bestimmt wird [83; 85]. Diese Beobachtung kann im Rahmen des semiklassischen

<sup>2</sup>Die Bezeichnung als sequentielle Doppelionisation zeigt an, dass es sich um zwei unabhängige Ionisationsschritte handelt. Der Begriff wird hier weiter verwendet, obwohl es Korrelationen in der Doppelionisation geben kann, die darauf beruhen, dass das Ion vor dem zweiten Ionisationsschritt nicht in den Grundzustand relaxiert ist.

Modells der Starkfeldionisation (siehe Kap. 2.7) unter der Annahme zweier unabhängiger und sequentieller Ionisationsschritte verstanden werden [148; 7].

Experimente, die von Schöffler *et al.* in der Arbeitsgruppe von Markus Kitzler (Technische Universität Wien) für die Doppelionisation von Helium in nahezu zirkular polarisierten Laserpulsen durchgeführt wurden, zeigten jedoch, dass die Ionenimpulsverteilungen in Laserpulsen mit nur wenigen optischen Zyklen sechs Maxima ausweisen kann [149]. Die Messung basiert auf der Detektion der Ionenimpulse mit einem COLTRIMS-Aufbau (siehe Kap. 3.7). Im Gegensatz zu dem im letzten Kapitel beschriebenen Ionenstrahlungsmessungen (siehe Kap. 5.2) stellt in diesem Fall ein Gasjet hohe Dichten neutraler Atome zur Verfügung. Zusätzlich wurde in diesem Experiment die relative Phase der ultrakurzen Laserpulse mit einem Phasenmeter registriert, um auch die CEP-Abhängigkeit der SDI in nahezu zirkular polarisierten, ultrakurzen Laserpulsen zu studieren [150].

In Rahmen der engen Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe in Wien bestand die Aufgabe ein detaillierteres Verständnis der experimentellen Ergebnisse mit Hilfe von semiklassischen Simulationen zu gewinnen. Es zeigt sich, dass auch für ultrakurze Laserpulse, wenn die sequentielle Doppelionisation in einem sehr kurzen Zeitintervall konzentriert ist, ein ausschließlich auf sequentieller Doppelionisation beruhendes Modell die Beobachtung reproduzieren kann.

Es verbleiben jedoch gewisse Unterschiede zwischen den gemessenen und simulierten Ergebnissen, die vor allem die CEP-Abhängigkeit der Impulsverteilungen betreffen [149]. Die Frage ist insbesondere, ob die Unterschiede zwischen den gemessenen und simulierten Impulsverteilungen auf Korrelation zurückzuführen sind oder triviale Ursachen (wie Chirp der Laserpulse usw.) haben.

Gechirpte Pulse sind ein etabliertes Mittel, um die Quantenprozesse in Molekülen und Atomen auf der fs-Zeitskala zu kontrollieren [151; 152; 153; 154; 155]. Bisher gibt es jedoch relativ wenig Forschung über den Einfluss der spektralen Phase auf die Tunnelionisation auf der Attosekundenzeitskala. Ein gutes Verständnis über den Einfluss des Chirp und der anderen Laserpulspulsparemeter ist wichtig, um die Unterschiede zwischen den Ergebnissen von Experimenten und Simulationen für die SDI in Few-Cycle-Laserpulsen korrekt zu interpretieren [149; 156].

Das Ziel dieses Kapitels ist es, numerisch zu untersuchen, welchen Einfluss verschiedene Laserparameter, wie die Intensität, die spektrale Phase der Laserpulse und die sich daraus ergebende Form des elektrischen Feldes, auf den Prozess der Doppelionisation nehmen können. Der Fokus liegt dabei auf dem Parameterbereich, in dem der beobachtete Wechsel von vier zu sechs Maxima in der Impulsverteilung der Ionen nach SDI zu beobachten ist.

Der Ansatz besteht darin, mit Hilfe einer semiklassischen Monte-Carlo-Simulationen von Elektronentrajektorien (CTMC) die Auswirkungen der einzelnen Laserparameter auf die resultierenden Ionenimpulsverteilungen und der zugrunde liegenden SDI-Dynamik systematisch und getrennt voneinander zu untersuchen. Zuerst werden die Einzelheiten des genutzten semiklassischen Modells erläutert. Anhand des quantitativen Vergleichs mit den von Schöffler *et al.* veröffentlichten Ergebnissen der SDI von Helium kann die Gültigkeit des Modells überprüft werden [149]. Schließlich wird in Kap. 5.3.5 das vorgestellte Modell verwendet, um die Auswirkungen verschiedener Pulsparemeter auf die Doppelionisation zu untersuchen.

### 5.3.2 Semiklassisches Modell der sequentiellen Doppelionisation

Für die theoretische Beschreibung von SDI in einem elliptisch polarisierten Feld wäre der direkte Ansatz die *ab initio* Integration der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung (TDSE) für zwei Elektronen. Dieser Ansatz erfordert jedoch einen enormen Rechenaufwand und kann daher für die hier relevanten Intensitäten nicht realisiert werden. Darüber hinaus liefert die Lösung der TDSE nur einen begrenzten Einblick in die zugrundeliegende Dynamik. Aus diesen Gründen sind semiklassische Modelle vergleichsweise gut geeignet, um die sequentielle Doppelionisation zu untersuchen [133].

Das hier verwendete semiklassische Modell unterscheidet sich von dem in Kap. 4 verwendeten Modell dadurch, dass es einerseits vereinfacht wird, indem die Coulomb-Wechselwirkung vernachlässigt wird, andererseits die Monte-Carlo-Simulation um den weiteren Ionisationsschritt der sequentiellen Doppelionisation erweitert wird.

Die Ionisationsrate, die von Tong und Lin [127] vorgeschlagen wurde und auf statischer Tunnelionisation [34] (siehe Kap. 2.4) basiert, wird genutzt, um die gekoppelten Ratengleichungen für die zeitabhängige Bevölkerung der beiden Ladungszustände numerisch zu lösen [157].

Eine Monte-Carlo-Simulation erzeugt dann ein Ensemble von Kombinationen von Ionisationszeiten,  $t_1$  und  $t_2$ , die anschließend zur Berechnung der asymptotischen Elektronenimpulse verwendet werden,  $\mathbf{p}_1 = -\mathbf{A}(t_1)$  und  $\mathbf{p}_2 = -\mathbf{A}(t_2)$ . Der daraus resultierende Impuls der doppelt geladenen Ionen  $\mathbf{p}_{ion}$  ist durch die Summe  $\mathbf{p}_{ion} = -(\mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_2)$  gegeben.

Das Modell geht von einer strikt sequentiellen Doppelionisationsdynamik aus. Die Durchführung der Monte-Carlo-Simulation nach der numerischen Lösung der gekoppelten Ratengleichungen, die die exponentielle Abhängigkeit der Tunnelrate von der Feldstärke einschließt, berücksichtigt jedoch, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit des zweiten Elektrons von der zeitabhängigen Population des ersten Ladungszustandes abhängig ist. Diese Interdependenz wird stark durch die Subzyklenform des Laserfeldes beeinflusst und koppelt den zeitlichen Ablauf der beiden Ionisationsereignisse umso stärker, je kürzer der Puls ist.

In dem hier genutzten Modell werden mehrere Aspekte vernachlässigt, um die Theorie zu vereinfachen und gleichzeitig die relevanten Effekte abzudecken. Insbesondere wird die zeitabhängige Modulation der Ionisationsraten, die durch die Schwingungen der im Ion verbleibenden gebundenen Wellenfunktion nach der Entfernung des ersten Elektrons induziert wird, nicht berücksichtigt [158; 137; 157]. Zusätzlich werden die Coulomb-Kräfte zwischen den beiden Elektronen und Ionen sowie zwischen den Elektronen nicht betrachtet [105; 32; 159]. Dass die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen in SDI mit elliptisch polarisierten Laserfeldern keine signifikanten Einflüsse auf die Ionenimpulsverteilungen haben, wurde von Tong *et al.* in klassischer Berechnung gezeigt [160].

### 5.3.3 Simulation der sequentiellen Doppelionisation

Für die Simulation der SDI wird das Laserfeld als Laserpuls mit einem Gaußschen Spektrum beschrieben und ist durch folgende Parameter definiert: Spitzenintensität  $I$ , Fourierlimitierte Pulsdauer der Intensitätseinhüllenden  $\tau_0$ , Zentralwellenlänge  $\lambda_0$ , Carrier-Envelope-Phase (CEP) sowie zweite  $\phi^{(2)}$  und dritte  $\phi^{(3)}$  Ordnung der spektralen Phase. In Abhängigkeit der verschiedenen Parameter kann das elektrische Feld

$$E(\omega) \propto \sqrt{S(\omega)} e^{-i\frac{1}{2}\phi^{(2)}(\omega-\omega_0)^2} e^{-i\frac{1}{6}\phi^{(3)}(\omega-\omega_0)^3}, \quad (5.1)$$

unter Anwendung der üblichen Taylorentwicklung [124] um die Zentralfrequenz  $\omega_0$  des Laserpulses berechnet werden. Dabei ist  $S(\omega) \propto \exp\left(-\frac{\tau_0^2}{4\ln(2)}(\omega - \omega_0)^2\right)$  die spektrale Leistungsdichte. Der Einfluss weiterer Ordnungen der spektralen Phase wird hier nicht betrachtet. Das zeitabhängige elektrische Feld des Laserpulses  $E(t)$  berechnet sich aus dem Realteil der Fouriertransformation von  $E(\omega)$ .

Das Koordinatensystem wird, in Übereinstimmung mit Schöffler *et al.* [149], so gewählt, dass sich der Laserstrahl in  $y$ -Richtung ausbreitet, die Feldvektoren also in der  $x$ - $z$ -Ebene schwingen. Für einen Puls mit  $\phi^{(2)} = 0$  und  $\phi^{(3)} = 0$ , gleichbedeutend mit einem fourierlimitierten Laserpuls, nehmen die Komponenten des Laserfeldes die folgende Form an

$$\mathbf{E}(t) = f(t) \frac{F_0}{\sqrt{1 + \epsilon^2}} \begin{pmatrix} \cos(\omega t + \phi_0) \mathbf{e}_x \\ -\epsilon \sin(\omega t + \phi_0) \mathbf{e}_z \end{pmatrix}, \quad (5.2)$$

wobei die Einhüllende  $f(t)$  durch einen Gaußpuls mit  $f(t) = \exp\left(-2 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_0}\right)^2\right)$  beschrieben werden kann, der eine FWHM (Full-Width-at-Half-Maximum)-Pulsdauer  $\tau_0$  in der Intensität aufweist. Der Vorfaktor,  $F_0$ , ergibt sich aus der maximalen Fokusintensität  $F_0 = \sqrt{I}$  in atomaren Einheiten am Maximum eines Gaußschen Laserstrahles [161].

Um die sequentielle Doppelionisation zu simulieren, wird die zeitabhängige Wahrscheinlichkeit der beteiligten Ladungszustände,  $P_{He}(t)$ ,  $P_{He^+}(t)$  und  $P_{He^{2+}}(t)$ , ermittelt, indem die gekoppelten Ratengleichungen gelöst werden

$$\frac{dP_{He}}{dt} = -\Gamma_{He \Rightarrow He^+}(t) P_{He}(t) \quad (5.3)$$

$$\frac{dP_{He^+}}{dt} = \Gamma_{He \Rightarrow He^+}(t) P_{He}(t) - \Gamma_{He^+ \Rightarrow He^{2+}}(t) P_{He^+}(t) \quad (5.4)$$

$$\frac{dP_{He^{2+}}}{dt} = \Gamma_{He^+ \Rightarrow He^{2+}}(t) P_{He^+}(t). \quad (5.5)$$

Dabei ist  $\Gamma_{nlm}(t)$  die quasistatische Ionisationsrate mit  $\Gamma(t) = \Gamma_{TBI}(t) \Gamma_{nlm}(t)$  mit der ADK-Rate  $\Gamma_{nlm}$ , die auch von der Drehimpulsquantenzahl  $l$  und der Bahndrehimpulsquantenzahl  $m$  der Elektronen des Atoms abhängt (siehe Kap. 2.4) [34]. Der Faktor  $\Gamma_{TBI}$  ist wie in Kap. 4 die von Tong *et al.* vorgeschlagene empirische Korrektur der Überschätzung der Ionisation bei hohen Feldstärken nahe der Barrier-Suppression-Ionisation  $\Gamma_{TBI} = \exp\left(-\alpha \frac{2Z}{\kappa^2} \frac{|E|}{\kappa^3}\right)$  [126; 127]. Das Ionisationspotential des jeweiligen Ladungszustandes geht durch die Größe  $\kappa = \sqrt{2|I_P|}$  ein. Eine Übersicht über die relevanten Parameter ist in Tabelle 5.1 dargestellt.

Atom	$ I_P (eV)$	$Z$	$l$	$C_{nl}$	$ m $	$\alpha$
He	24,59	1	0	3,13	0	7
He <sup>+</sup>	54,54	2	0	5,66	0	6

Tabelle 5.1: Parameter für die Berechnung der Ionisationsrate [126; 127].

Um die Anzahl der Elektronen im Atom, die zur Ionisationswahrscheinlichkeit beitragen können, zu berücksichtigen, muss die Ionisationsrate mit der Anzahl der Elektronen des jeweiligen Ladungszustandes multipliziert werden [157]. Für das neutrale Heliumatom im ersten Ionisationsschritt heißt das

$$\Gamma_{He \Rightarrow He^+} = 2\Gamma_{TBIHe}(t) P_{He}(t). \quad (5.6)$$

Für den zweiten Ionisationsschritt ist dieser Faktor nur halb so groß, da das Heliumion  $\text{He}^+$  ein Einelektronensystem ist.

Aus der Lösung der Ratengleichung für ein gegebenes Laserfeld mit der Elliptizität  $\epsilon$ , der maximalen Feldstärke  $F_0$ , Pulsdauer  $\tau_0$  und der CEP  $\phi_0$  folgen die zeitabhängigen Wahrscheinlichkeiten,  $P_{\text{He}}(t)$ ,  $P_{\text{He}^+}(t)$  und  $P_{\text{He}^{2+}}(t)$ , die angeben, zu welchem Anteil sich das Atom in diesen Ladungszuständen befindet.

Für die Ionisationszeiten wird eine auf Zufallszahlen basierende Verteilung erstellt, die den Ergebnissen der Ratengleichungen folgen (siehe Gl. 5.5) und den zugrunde liegenden kausalen Zusammenhang erfüllen: Das zweite Elektron muss nach dem ersten Elektron ionisiert werden,  $t_1^{\text{He} \Rightarrow \text{He}^+} < t_2^{\text{He}^+ \Rightarrow \text{He}^{2+}}$ . Um dies sicher zu stellen, wird zuerst die Ratengleichung gelöst, um die zeitabhängige Ionisationsrate  $dP_{\text{He}^+}/dt$  für den ersten Ionisationsschritt zu erhalten. Dann wird eine Ionisationszeit auf Basis dieser Lösung bestimmt,  $t_1^{\text{He} \Rightarrow \text{He}^+}$ . Für diese Ionisationszeit der ersten Ionisation  $t_1^{\text{He} \Rightarrow \text{He}^+}$  werden die Ratengleichungen noch einmal mit neuen Startbedingungen  $P_{\text{He}}(t_1^{\text{He} \Rightarrow \text{He}^+}) = 0$ ,  $P_{\text{He}^+}(t_1^{\text{He} \Rightarrow \text{He}^+}) = 1$  und  $P_{\text{He}^{2+}}(t_1^{\text{He} \Rightarrow \text{He}^+}) = 0$  gelöst. Mit dem Ergebnis kann die zweite Ionisationszeit  $t_2^{\text{He}^+ \Rightarrow \text{He}^{2+}}$  ermittelt werden.

Der Impuls des  $\text{He}^{2+}$ -Ions  $\mathbf{p}_{\text{ion}}$  nach der Doppelionisation wird dann aus der Summe der Impulse der beiden emittierten Elektronen berechnet  $\mathbf{p}_{\text{ion}} = -(\mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_2)$ . Da sowohl eine Anfangsgeschwindigkeit der Elektronen nach der Tunnelionisation als auch jede Coulomb-Interaktion zwischen den beiden Elektronen oder der Elektronen mit dem Ion vernachlässigt werden, sind die Driftimpulse der Elektronen durch das Vektorpotential an den Ionisationszeitpunkten gegeben  $\mathbf{p}_e = -\mathbf{A}(t)$  (siehe Gl. 2.16 in Kap. 2.7). Es gilt  $\mathbf{A}(t) = -\int_{-\infty}^t \mathbf{E}(t') dt'$ . Der Impuls des  $\text{He}^{2+}$ -Ion kann aus der Summe der Vektorpotentiale an den Ionisationszeitpunkten berechnet werden,  $\mathbf{p}_{\text{ion}} = \mathbf{A}(t_1^{\text{He} \Rightarrow \text{He}^+}) + \mathbf{A}(t_2^{\text{He}^+ \Rightarrow \text{He}^{2+}})$ .

Diese Berechnungen werden für eine große Anzahl von Ionisationsereignissen für verschiedene Intensitäten entsprechend der dreidimensionalen Intensitätsverteilung im Laserfokus wiederholt [149]. Die Beiträge der verschiedenen Feldstärken zu dem Ensemble von Ionenimpulsen ergeben sich aus der Ionisationswahrscheinlichkeit sowie der relativen Häufigkeit, mit der diese Feldstärke im Laserfokus auftritt [75].

Für die Simulation wurden die Parameter so gewählt, dass sie den experimentellen Bedingungen von Schöffler *et al.* entsprechen [149]. Die Elliptizität war  $\epsilon = 0.95$  und die Zentralwellenlänge betrug 750 nm. Für den Vergleich der Simulationen mit dem Experiment wurde ein fokussierter Gaußscher Strahl mit einer Rayleigh-Länge von 200  $\mu\text{m}$  angenommen. Um die CEP-Auflösung sicherzustellen, wurde im Experiment der Gasjet mit einer Dicke von 20  $\mu\text{m}$  in einem Abstand von 150  $\mu\text{m}$  vom Laserfokuspunkt positioniert. Dessen Lage wurde in den Simulationen berücksichtigt. Bei der Angabe der Intensität ist dies zu beachten, da durch die Verschiebung des Gasjets die effektive Intensität im Vergleich zur maximalen Fokusintensität stark reduziert wird. Die CEP-Mittelung aufgrund der Gouy-Phase wurde bei der Berechnung vernachlässigt, da der Gasjet viel kürzer als die Rayleigh-Länge war.

### 5.3.4 Vergleich von Experiment und Simulation

Die Ergebnisse der CTMC-Simulationen sind in Abb. 5.4 mit den experimentellen Ergebnissen von Schöffler *et al.* verglichen [149]. Eine gute Übereinstimmung zwischen den gemessenen und den simulierten Impulsverteilungen wird für eine Pulsdauer von  $\tau_0 = 4.38$  fs ( $\phi^{(2)} = 0$ ,  $\phi^{(3)} = 0$ ,  $\lambda_0 = 750$  nm,  $\epsilon=0.95$ ) in der Simulation erreicht. Diese Pulsdauer ist etwas kürzer als die

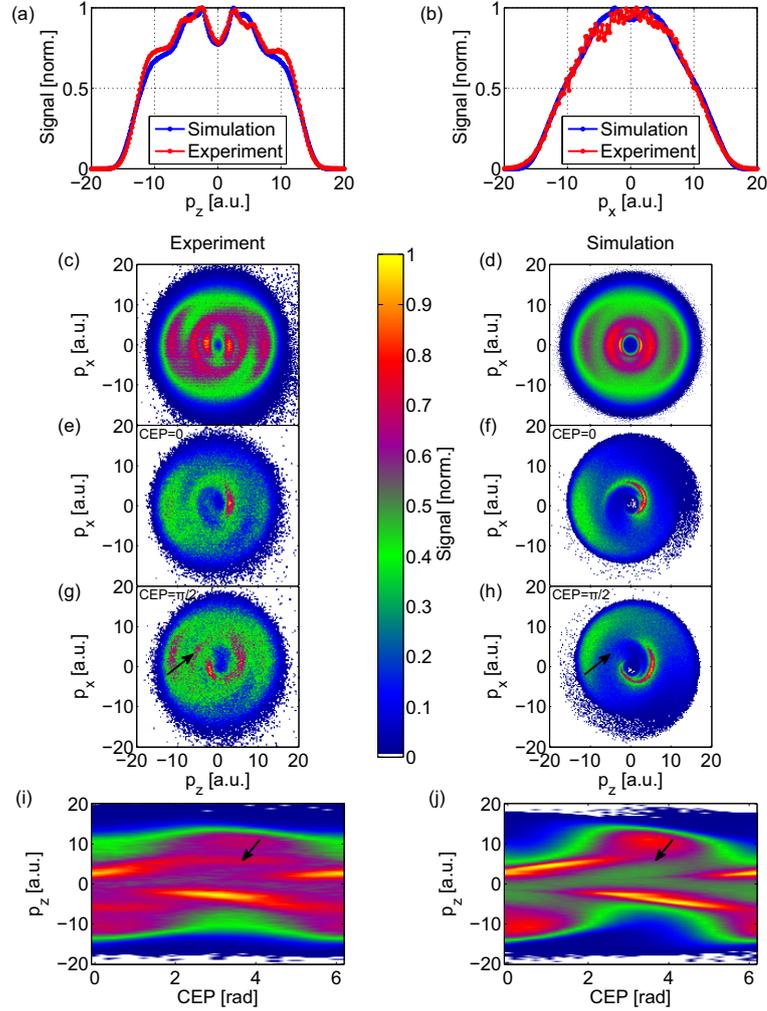


Abbildung 5.4: Gemessene und simulierte  $\text{He}^{2+}$  Impulsverteilungen (integriert über alle Werte der CEP) in Richtung von  $p_z$  (a) und  $p_x$  (b), gemessene Verteilung in der Polarisationsebene (c), integriert über alle Werte der CEP für eine Pulsdauer von  $\tau_0 = 4.5\text{fs}$  und eine Intensität von  $I = 1 \times 10^{16}\text{W/cm}^2$ . (e) und (g) zeigen die Verteilung wie in (c) für  $\text{CEP}=0$  bzw.  $\text{CEP}=\pi/2$ , wobei die CEP über  $\pm 5^\circ$  gemittelt wurde. (d), (f) und (h) zeigen die entsprechenden Ergebnisse der CTMC-Simulation für die Impulsverteilungen, wobei die Pulsdauer  $\tau_0 = 4.38\text{fs}$  und die Intensität  $I = 9.6 \times 10^{15}\text{W/cm}^2$  gewählt wurde. (i) und (j) stellen die Abhängigkeit von der CEP für die gemessene bzw. simulierte Verteilung entlang  $p_z$  (über alle anderen Richtung integriert) dar. Die CEP der Messung wurde so angepasst, dass die Ergebnisse der Simulation und der Messung an den Maxima der Zählrate bei kleinen Impulsen gut übereinstimmen.

im Experiment gemessene, liegt aber immer noch innerhalb der Unsicherheit der Messwerte ( $\tau = 4.5$  fs,  $\phi^{(2)} \approx 0$ ,  $\phi^{(3)} \approx 0$ ,  $\lambda_0 = 750$  nm,  $\epsilon = 0.95$ ).

Die für die Übereinstimmung mit den Messdaten erforderliche Spitzenintensität in der Simulation wurde durch Abgleich des maximalen Impulsbetrages der Ionenimpulsverteilung im Experiment und in der Simulation ermittelt. Dies basiert wieder auf der Beziehung zwischen dem Elektronenimpuls und dem Vektorpotential des Laserfeldes  $\mathbf{p}_{1,2} = -\mathbf{A}(t_{1,2})$  (siehe Gl. 2.16). Die beste Übereinstimmung wurde für  $I_0 = 7.4 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> gefunden. Dabei ist zu beachten, dass im Experiment die Laserfokusposition außerhalb des Gasjets lag. Daher war die Intensität an der Position des Gasjets deutlich geringer als im Fokus. Unter Verwendung der Notation von Schöffler *et al.* [149] entspricht die Intensität im Durchschnitt  $I = 9.6 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> innerhalb der begrenzten räumlichen Ausdehnung des Gasjets, das nur einen kleinen Teil des Fokusvolumens in der Messung auswählt. Dieses Ergebnis ist in sehr guter Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert von  $I = 1 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> [149].

Besonders auffallend ist die Übereinstimmung für die CEP-integrierte Ionenimpulsverteilung in der Polarisationssebene (siehe Abb. 5.4 (a)–(d)). Die wesentlichen Merkmale der gemessenen Verteilung, einschließlich der Aufspaltung der 4-Peak-Struktur in eine 6-Peak-Struktur, werden durch die Simulationen reproduziert. Sogar die CEP-aufgelösten Ergebnisse, die in Abb. 5.4 (e)–(h) verglichen werden, stimmen gut überein. Allerdings sind kleine Unterschiede auffällig, die durch die Pfeile in Abb. 5.4 (g)–(h) markiert sind. Diese Abweichungen übertragen sich auf ein entsprechendes Merkmal in der CEP-aufgelösten Impulsverteilung entlang  $p_z$ , wie ein Vergleich von Abb. 5.4 (i) mit Abb. 5.4 (g) zeigt.

Es stellt sich die Frage ist, ob diese Struktur eventuell auf korrelierte Doppelionisation zurückzuführen ist. Die folgende eingehende Analyse zeigt, dass dies nicht der Fall ist. Um diese Frage zu klären und einen besseren Einblick in die zu Grunde liegende Doppelionisationsdynamik zu gewinnen, werden die Einflüsse verschiedener Parameter auf die Impulsverteilungen im Detail betrachtet.

### 5.3.5 Einfluss der Pulsparameter auf die Impulsverteilung

In dem vorangegangenen Kapitel wurde die Tauglichkeit des Modells durch die Reproduktion der gemessenen Ionenimpulsverteilungen bestätigt. Dies umfasste sowohl die CEP-integrierten als auch die CEP-aufgelösten Verteilungen. Nun kann der Einfluss der verschiedenen Pulsparameter ( $I$ ,  $\tau_0$ ,  $\phi^{(2)}$ ,  $\phi^{(3)}$ ) auf die simulierten Verteilungen untersucht werden.

Dabei ist anzunehmen, dass die CEP-aufgelösten Verteilungen besonders sensitiv auf Veränderungen der Pulsparameter sind. Der Grund ist, dass die erste Ionisation typischerweise bei viel niedrigeren Feldstärken stattfindet. Die Ionisation des ersten Schrittes erfolgt damit früh in der ansteigenden Flanke des Pulses, deren Form sensitiv auf die Laserparameter ist. Im Vergleich zu Simulationen der Einfachionisation erhöht sich daher für die Doppelionisation die erforderliche Genauigkeit mit der die Pulsform für eine möglichst exakte Modellierung experimenteller Ergebnisse bekannt sein muss. Der zweite Ionisationsschritt findet dagegen überwiegend im glatten und flachen Bereich um das Pulsmaximum statt.

Darüber hinaus kann die zeitliche Verschiebung der spektralen Komponenten, die durch einen Chirp des Laserpulses hervorgerufen wird, die Ionisationsdynamik stark beeinflussen. Dies wird besonders durch die Eigenschaften des Experiments relevant. Die Methode zur Erzeugung von Pulsen mit wenigen Zyklen basiert auf der spektralen Verbreiterung der eingehenden

Pulse durch die ionisationsinduzierte Plasmanichtlinearität sowie Kerr-Nichtlinearität in einer gasgefüllten Hohlleiter [162; 163] (siehe Kap. 8.3.3). Nach der spektralen Verbreiterung wird die erzeugte spektrale Phase mit Hilfe von dielektrischen Vielschichtspiegeln kompensiert, um ein Feld mit wenigen Zyklen zu erzeugen. Es muss beachtet werden, dass diese Kompensation in der Regel nicht perfekt ist, sodass nur eine Kombination von Chirp zweiter und dritter Ordnung minimiert wird und somit ein gewisser Anteil an nichtlinearem Chirp unkompensiert bleibt.

Außerdem sind die resultierenden Spektren typischerweise nicht perfekt gaußförmig, sondern weisen starke spektrale Modulationen in der Intensität auf [164]. Dies führt oft zu ausgeprägten Vor- und/oder Nachpulsen, die leicht Intensitätsamplituden von 10 % des Hauptpulses erreichen können [165].

### 5.3.5.1 Abhängigkeit von der Pulsdauer

Bevor die Abhängigkeit der SDI von kleinen Änderungen der Pulsdauer im Few-Cycle-Regime diskutiert wird, soll im Folgenden der grundsätzliche Unterschied in der Doppelionisation mit ultrakurzen und mit langen Pulsen veranschaulicht werden.

Bei langen Pulsen ist die Ionisationswahrscheinlichkeit jedes Ionisationsschrittes über viele Laserzyklen verteilt (siehe Abb. 5.5). So ist die Anzahl der Elektronen, die in positiver oder negativer Richtung emittiert werden, nahezu identisch und die Impulsverteilungen für das erste und das zweite emittierte Elektron sind auch bei fester CEP symmetrisch (siehe Abb. 5.5 (e)). Dies führt zu einer symmetrischen Impulsverteilung der Ionen (siehe Abb. 5.5 (a)). Wie in (c) gezeigt, entfernt die lange und langsam variierende Pulseinhüllende jede Korrelation zwischen der Phase des Laserfeldes zum Zeitpunkt des ersten und zweiten Ionisationsschrittes. Die klassischen Zeitpunkte, zu denen das erste und zweite Elektron im Kontinuum geboren werden, sind nicht miteinander verbunden.

Im Gegensatz dazu werden bei Laserpulsen mit wenigen Zyklen die Ionisationswahrscheinlichkeiten beider Ionisationsschritte in einen einzigen Zyklus oder sogar in einen einzigen Halbzyklus des Feldes konzentriert (siehe Abb. 5.5 (d)). Das zirkular polarisierte Feld ändert sich schnell in Amplitude und Richtung und beschreibt in der ansteigenden Pulsflanke eine Auswärtsspirale des elektrischen Feldvektors. Daher nimmt die beobachtete Photoelektronenimpulsverteilung die Form einer Spirale an und wird asymmetrisch, siehe Abb. 5.5 (f). Je kürzer der Puls, desto stärker ist die Verknüpfung der Ionisationszeiten und der entsprechenden Elektronenimpulse, was zu einer asymmetrischen Ionenimpulsverteilung führt (siehe Abb. 5.5 (b)).

Für das Limit eines einzelnen beitragenden Halbzyklus und einer festen CEP ist die erste Elektronenemission auf einen sehr kleinen Winkelsektor beschränkt, und der Bereich der Zeitpunkte des zweiten Ionisationsereignisses und die daraus resultierenden Emissionsrichtungen sind extrem sensitiv auf die Form des elektrischen Feldes.

Die Simulation der Pulsdauerabhängigkeit vom Few-Cycle-Pulsen zu langen Pulsen in Abb. 5.6 zeigt, wie die Hauptmerkmale der Ionenimpulsverteilung von der Pulsdauer  $\tau_0$  abhängen, wobei immer noch  $\phi^{(2)} = 0$ ,  $\phi^{(3)} = 0$  angenommen wird. Die Abb. 5.6 (a) zeigt einen Schnitt durch die Ionenimpulsverteilung um eine Region  $p_x = 0$ . Die Verteilung beginnt bei einer 4-Peak-Struktur für sehr kurze Pulse, wandelt sich in eine 6-Peak-Struktur nahe der im Experiment verwendeten Pulsdauer ( $\tau \approx 4.5$  fs) und wechselt zurück zu einer 4-Peak-Struktur für längere

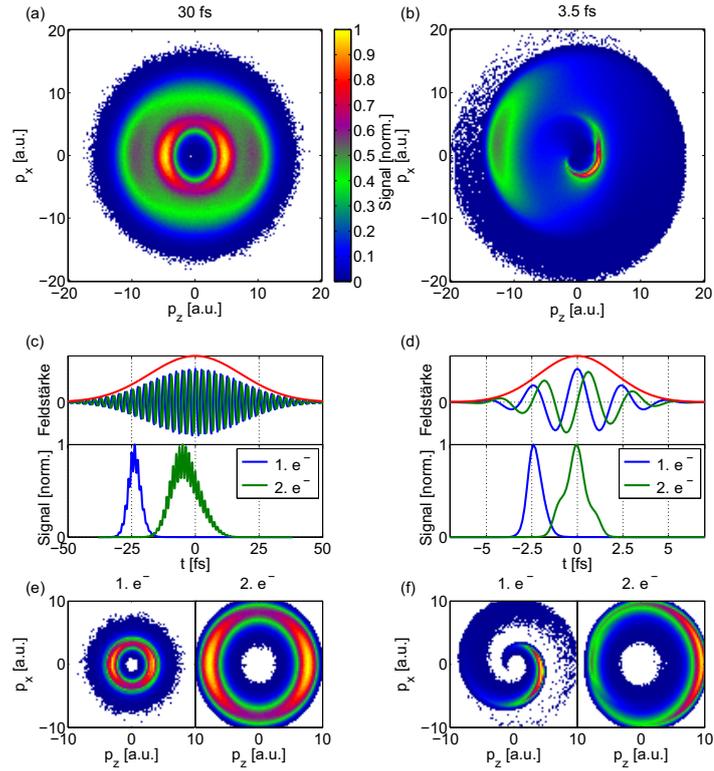


Abbildung 5.5: Vergleich der SDI von Helium mit einem langen und einem kurzen Laserpuls: Simulationsergebnisse für einen langen (30 fs) (links) und einen sehr kurzen Puls (3.5 fs) (rechts) mit einer CEP=[-5°,5°]: (a) und (b) zeigen die Ionenimpulsverteilungen, (c) und (d) die  $E_z$ -,  $E_x$ -Komponenten und Einhüllende des Laserfeldes mit den Ionisationszeiten für die beiden Elektronen. (e,f) Impulsverteilungen des ersten und zweiten emittierten Elektrons.

Pulse. Wie in Abb. 5.6,(b) gezeigt, manifestiert sich dieses Verhalten in einer pulsdauerabhängigen Breite der Verteilung, die mit der Varianz  $\mu_2$  von  $p_z$  charakterisiert werden kann. Zur weiteren Veranschaulichung der Pulsdauerabhängigkeit sind Beispiele der CEP-integrierten Ionenimpulsverteilung für ausgewählte Pulsdauern in Abb. 5.6 (c) dargestellt.

Das Extrahieren der beiden Elektronenemissionszeiten aus der Simulation (siehe Abb. 5.6 (f)) zeigt, dass sich die Ionisationswahrscheinlichkeit für das zweite Elektron über zwei Laserzyklen erstreckt und die gemessene 6-Peak-Struktur verursacht. Bei längeren Laserpulsen wird die zweite Elektronenemission über mehrere Zyklen verteilt und die 6-Peak-Struktur kehrt zu einer 4-Peak-Struktur zurück.

Mit den Elektronenimpulsen  $p_{z1}$  und  $p_{z2}$  kann die  $\tau_0$ -Abhängigkeit der CEP-integrierten Impuls-koinzidenzverteilung des ersten und zweiten emittierten Elektrons untersucht werden (siehe Abb. 5.6 (d)). In dieser Darstellung befindet sich die parallele Emission beider Elektronen in die gleiche Hemisphäre (äußerer Ring in Abb. 5.6 (c)) im ersten und dritten Quadranten, während die antiparallele Elektronenemission (innerer Ring) im zweiten und vierten Quadranten liegt. Für 3.5 fs existiert nur ein sehr enger Bereich antiparalleler Impulskombinationen von  $p_{z1}$  und  $p_{z2}$ , (zweiter und vierter Quadrant). An dieser Stelle findet für eine Pulsdauer von 4 fs eine Aufspaltung für die antiparallele Emission statt, die mit den Beobachtungen der 6-Peak-Struktur übereinstimmt. Sie verschwindet für  $\tau_0$  länger als 5 fs.

Die Strukturen im ersten und dritten Quadranten, die der parallelen Zweielektronenemissi-

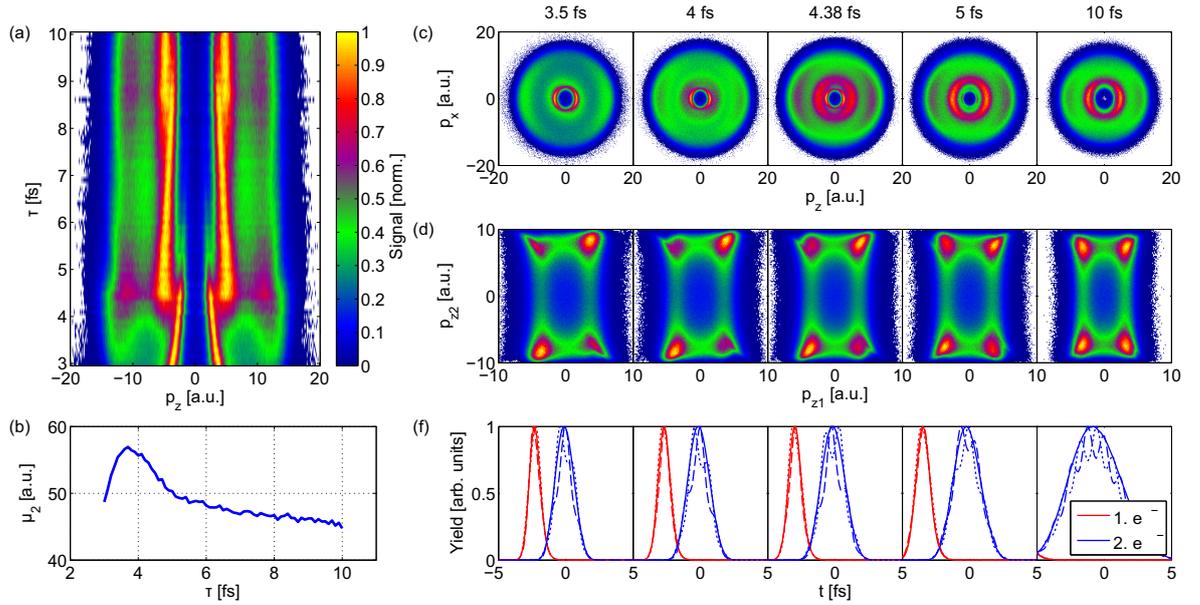


Abbildung 5.6: Simulierte Pulsdauerabhängigkeit der über die CEP integrierten  $\text{He}^{2+}$ -Impulsverteilungen ( $I = 9.6 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ,  $\phi^{(2)} = 0$ ,  $\phi^{(3)} = 0$ ): (a) Ionenimpulsverteilung entlang  $p_z$  für  $|p_x| < 2$  a.u. als Funktion der Pulsdauer, (b) Pulsdauerabhängigkeit der Varianz  $\mu_2$  von  $p_z$ , (c) Ionenimpulsverteilung für verschiedene Pulsdauern, (d) Koinzidenzkarte entlang  $p_z$  des Impulses des ersten gegenüber dem zweiten emittierten Elektronen, (f) Ionisationszeiten für alle (durchgezogene Linie) CEPs und für CEP von 0 (gestrichelt Linie) und  $\pi/2$  (gepunktete Linie) des ersten und des zweiten emittierten Elektrons.

on entsprechen, sind unabhängig von der Pulslänge (siehe Abb. 5.6 (d)). Damit ist auch die Form des äußeren Rings in der Ionenimpulsverteilung unabhängig von der Pulsdauer (siehe Abb. 5.6 (c)).

Diese Analyse der Richtungen der Elektronenemissionen setzt einige Fragezeichen an die Interpretation von gemessenen Elektronenkoinzidenzdaten für die Doppelionisation von Argon mit 7 fs-Pulsen [156], die sich eventuell auch mit einem sequentiellen Ablauf der Doppelionisation und damit ohne Elektronen-Elektronen-Korrelationseffekte erklären lassen.

Eine weitere Beobachtung in Abb. 5.6 ist, dass  $t_1$ , und damit  $p_1$ , bemerkenswert unempfindlich auf die Pulsdauer sind, da dieser Ionisationsschritt vollständig gesättigt ist. Dagegen ist  $t_2$  sehr sensitiv auf Änderungen von  $\tau_0$  und der CEP, sodass eine Steuerbarkeit der Doppelionisation auf der Subzyklenzeitskala möglich ist (siehe Abb. 5.6 (f)).

### 5.3.5.2 Abhängigkeit von der Intensität

Wie im vorherigen Abschnitt gezeigt, erfordert die Existenz der 6-Peak-Struktur, dass die zweite Elektronenemission über mehr als einen optischen Zyklus verteilt ist, während die erste Elektronenemission im Wesentlichen innerhalb eines einzigen Halbzyklus gesättigt wird. Ist die Intensität fest eingestellt, kann diese Bedingung durch Anpassung der Laserpulsdauer erfüllt werden. Alternativ kann bei einer festen Pulsdauer ein ähnliches Verhalten durch die Veränderung der Intensität erreicht werden, wie an der Intensitätsabhängigkeit des Schnittes durch die Ionenimpulsverteilungen um eine Region  $p_x = 0$  in Abb. 5.7 (a) und (b) im Vergleich zu Abb. 5.6 (a) deutlich wird. In den gemessenen Verteilungen ist der Übergang von 4 zu 6

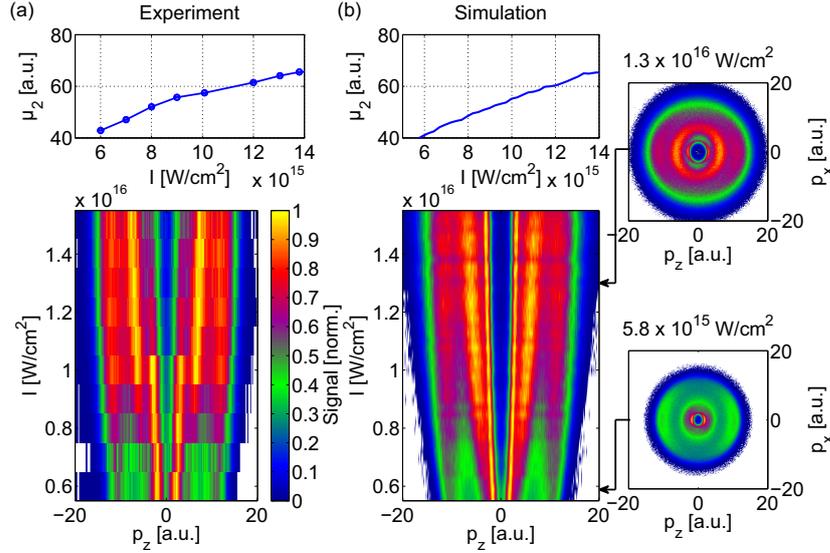


Abbildung 5.7: Abhängigkeit der  $\text{He}^{2+}$ -Impulsverteilungen von der Intensität der Laserpulse bei einer Pulsdauer von  $\tau_0=4.38$  fs ( $\phi^{(2)} = 0$ ,  $\phi^{(3)} = 0$ ) für das Experiment (a) und die Simulation (b). Die Abbildungen zeigen einen Schnitt der Impulsverteilung in Abhängigkeit der  $p_y$ -Komponente um eine Region mit  $p_x = 0$ . Dabei wurden die Ionisationsereignisse über  $|p_x| < 2$  a.u. sowie über alle Werte der CEP summiert. Für jede Intensität wurde die Verteilung auf das Maximum normiert. Die Intensitätswerte geben die maximale Intensität an der Position des Gasjets an [149].

und zurück zu 4 Peaks für die Erhöhung der Intensität ähnlich wie bei der Erhöhung der Pulsdauer  $\tau_0$  zu beobachten.

Wie die Pulsdauerabhängigkeit kann diese Beobachtungen für die Intensitätsabhängigkeit dadurch erklärt werden, dass mit zunehmender Intensität mehr Halbzyklen zur Ionisation des zweiten Elektrons beitragen. Im Gegensatz zu den Messergebnissen bleibt in den simulierten Ionenimpulsverteilungen die 6-Peak-Struktur auch bei sehr hohen Intensitäten sichtbar (siehe Abb. 5.7). Der Grund für die Diskrepanz zwischen gemessenen und simulierten Verteilungen für hohe Intensitäten bleibt unklar. Jedoch wurden hier nur Pulse mit perfekt kompensierter spektraler Phase berücksichtigt.

Eine weitere Beobachtung ist, dass die intensitätsabhängige Varianz  $\mu_2$  monoton mit  $I$  zunimmt. Dies folgt daraus, dass der zweite Ionisationsschritt bei höheren Intensitäten stattfindet und damit das zweite emittierte Elektron ein größeres Vektorpotential erfährt.

### 5.3.5.3 Abhängigkeit von der spektralen Phase zweiter Ordnung

Ein weitere Möglichkeit zur Steuerung der Subzyklenemission in der SDI ist der Chirp zweiter Ordnung  $\phi^{(2)}$  des Laserfeldes. Die Abbildung 5.8 vergleicht die  $\phi^{(2)}$ -Abhängigkeit der gemessenen und simulierten Ionenimpulsverteilungen bei fester Spitzenintensität entlang  $p_z$ . In der Messung wurde  $\phi^{(2)}$  durch Hinzufügen von Glas in den Strahlengang variiert und dabei die Laserpulsenergie angepasst, um die Spitzenintensität konstant zu halten [149]. Das hinzugefügte Glas führt zu einer erhöhten Pulsdauer, lässt aber das Spektrum unverändert. Durch den Anstieg von  $\phi^{(2)}$  wird die Laserfrequenz während des Laserpulses zeitabhängig.

Die gemessenen Ionenimpulsverteilungen weisen einen Übergang zwischen 4 und 6 Peaks auf,

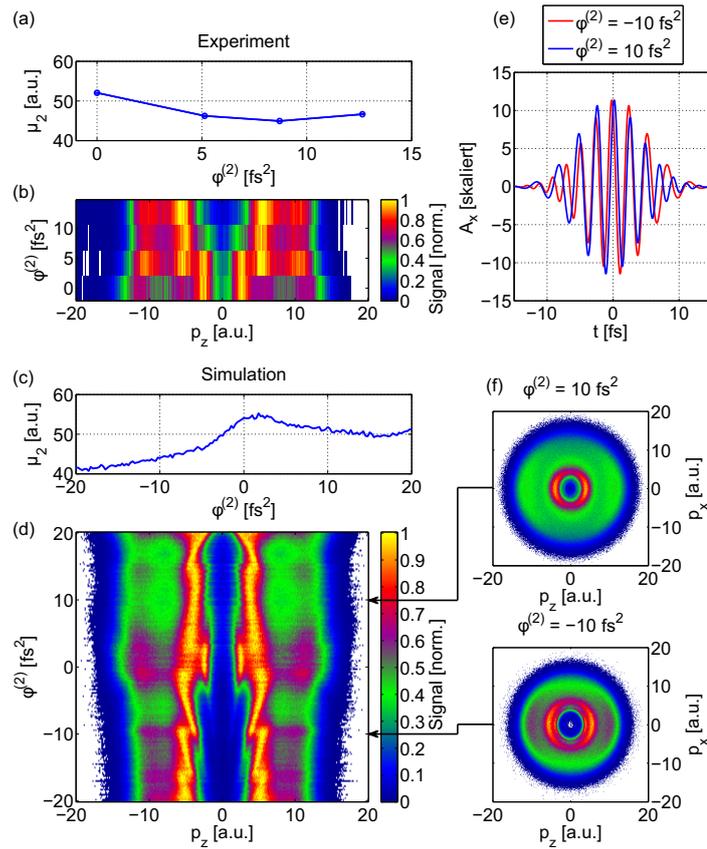


Abbildung 5.8: Abhängigkeit der CEP-integrierten He<sup>2+</sup>-Impulsverteilungen vom Chirp ( $\phi^{(2)}$ ). (a) Gemessene Breite und (b) die ganze Verteilung integriert über  $|p_x| < 2$  a.u. als Funktion der spektralen Phase zweiter Ordnung, (c) wie (a) und (d) wie (b) für die Simulation mit  $\tau = 4.38$  fs ( $\phi^{(3)} = 0$ ). (e) Vektorpotential für einen Laserpuls mit negativen und positiven  $\phi^{(2)}$ , (f) Ionenimpulsverteilung für positiven und negativen  $\phi^{(2)}$ .

der von der Simulation gut reproduziert wird, siehe Abb. 5.8 (d). Der Übergang kann mit ähnlichen Argumenten wie für die Pulsdauerabhängigkeit erklärt werden. Das heißt, der erste Ionisationsschritt ist gesättigt und der zweite Schritt wird über eine steigende Anzahl von optischen Zyklen verteilt, während  $\phi^{(2)}$  erhöht und der Puls gestreckt wird.

In der Simulation wurden auch negative  $\phi^{(2)}$  berücksichtigt. Die resultierenden Ionenimpulsverteilungen und die  $\mu_2$ -Evolution zeigen einen interessanten Effekt. Für negative  $\phi^{(2)}$ , siehe Abb. 5.8 (c), ist die Varianz  $\mu_2$  wesentlich kleiner als für positive  $\phi^{(2)}$  des gleichen absoluten Wertes. Dies geht einher mit weiteren vom Chirp abhängigen Merkmalen der Verteilung, siehe Abb. 5.8 (d).

Der Effekt lässt sich dadurch erklären, dass der Chirp einen zeitabhängigen Frequenzablauf induziert, der sich in zeitabhängige Elektronenimpulse übersetzt. Dies folgt daraus, dass die Ionisationszeitpunkte  $t_0$  und die Impulse der Elektronen  $\mathbf{p}$  über das Vektorpotential am Zeitpunkt  $t_0$  durch die Relation  $\mathbf{p} = -\mathbf{A}(t_0)$  verknüpft sind. Ist die ansteigende Flanke des Laserpulses blau-verschoben ( $\phi^{(2)} < 0$ ), erfährt das erste emittierte Elektron ein kleineres Vektorpotential und erhält dadurch einen geringeren Impuls. Das zweite Elektron, das um das Maximum des Pulses herum emittiert wird, wo die Trägerfrequenz im Vergleich zu ungechirpten Pulsen unverändert bleibt, erfährt dagegen keine solche Impulsverschiebung. Umgekehrt erhält bei einer rot-verschobenen ( $\phi^{(2)} > 0$ ) Vorderflanke des Laserpulses das erste Elektron

aufgrund des größeren Vektorpotentials einen größeren Impuls.

Der Einfluss des Chirps  $\phi^{(2)}$  auf  $\mathbf{A}$  wird in Abb. 5.8 (e) visualisiert, welche  $\mathbf{A}$  für einen gechirpten Puls mit Gaußscher, und damit symmetrischer, Einhüllenden des elektrischen Feldes,  $\mathbf{E}(t)$  zeigt. Aufgrund der Beziehung,  $\mathbf{A}(t) = -\int_{-\infty}^t \mathbf{E}(t') dt'$ , ist die Einhüllende des Vektorpotentials asymmetrisch. Der Ionenimpuls,  $\mathbf{p}_{ion}$ , ist die Summe beider Elektronenimpulse. Daraus folgt, dass wenn  $\mathbf{p}_2$  mehr oder weniger gleich bleibt, während  $\mathbf{p}_1$  durch die Frequenzen an der Vorderflanke des Laserpulses gesteuert wird, die Verteilung der resultierenden  $\mathbf{p}_{ion}$  für Pulse mit positiven oder negativen  $\phi^{(2)}$ -Werten breiter oder schmaler ist. Dies ist jeweils in Übereinstimmung mit der Chirp-abhängigen Breite der Verteilung in Abb. 5.8 (c).

#### 5.3.5.4 Abhängigkeit von der spektralen Phase dritter Ordnung

Es ist bekannt, dass Few-Cycle-Laserpulse Vor- und Nachpulse aufweisen können, die möglicherweise Einfluss auf die Doppelionisationsdynamik nehmen (siehe Kap. 5.3.5). Einen zwar qualitativen, aber systematischen und gut kontrollierbaren Zugang zu Vor- und Nachpulsen ermöglicht eine Untersuchungen der spektralen Phase dritter Ordnung (TOD)  $\phi^{(3)}$ .

Im Gegensatz zu der spektralen Phase zweiter Ordnung  $\phi^{(2)}$  führt die Phase  $\phi^{(3)}$  zu einer asymmetrischen Pulsform. Eine positive TOD erzeugt eine Pulseinhüllende, die neben einem asymmetrischen Hauptpuls mit steil abfallender Flanke eine Folge von Nachpulsen mit abnehmender Intensität aufweist. Das Ändern des Vorzeichens der TOD kehrt die zeitliche Reihenfolge dieser Pulseinhüllenden um (siehe Abb. 5.9 (g)). Obwohl diese Satellitenpulse nur einen Bruchteil der Amplitude des Hauptpulses haben, beeinflussen sie die SDI-Dynamik, indem sie die Ionisationszeiten signifikant verändern.

Die Abbildung 5.9 (d) zeigt die simulierten Ionenimpulsverteilungen für verschiedene Werte der TOD, wobei alle anderen Parameter konstant gehalten wurden ( $I = 9.6 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ,  $\tau_0 = 4.38 \text{ fs}$ ,  $\phi^{(2)} = 0$ ). Eine TOD von  $\pm 180 \text{ fs}^3$  führt zu FWHM-Pulsdauern des Hauptpulses von bis zu 8 fs. Mit zunehmender TOD verschwindet die 6-Peak-Struktur schnell und es wird nur eine 4-Peak-Struktur beobachtet. Damit ist die gemessene 6-Peak-Struktur mit hoher Wahrscheinlichkeit nicht auf Vor- oder Nachpulse zurückzuführen.

Ähnlich wie bei den Variationen von  $\phi^{(2)}$  unterscheiden sich die Ionenimpulsverteilungen für verschiedene Vorzeichen der spektralen Phase  $\phi^{(3)}$ , da  $\phi^{(3)}$  eine asymmetrische Form der Pulseinhüllenden und damit auch ein asymmetrisches Vektorpotential verursacht. Die Analyse der  $\phi^{(3)}$ -Abhängigkeit der Breite der Verteilung in Abb. 5.9 (c) zeigt, dass das Maximum der Breite in Richtung negativer Werte verschoben ist. Dies könnte durch eine steilere Steigung der Vorderflanke der Einhüllenden des Hauptpulses erklärt werden, die für einen kleinen Betrag von negativen  $\phi^{(3)}$  auftritt. Für diese Pulsform werden beide Ionisationsereignisse zeitlich näher zusammengeschoben.

Für einen stärkeren negativen TOD, der bei Werten von  $-50 \text{ fs}^3$  beginnt, spielen die Vorpulse eine wichtige Rolle. Wie Abb. 5.9 (h) für  $\phi^{(3)} = -70 \text{ fs}^3$  zeigt, wird der erste Ionisationsschritt zwischen dem Hauptpuls und dem Vorpuls aufgeteilt, was zu einer bimodalen Impulsverteilung des ersten emittierten Elektrons führt (siehe Abb. 5.9 (i)) Interessanterweise wird diese Aufteilung der Elektronenimpulsverteilung nicht in eine zusätzliche Aufspaltung der Ionenimpulsverteilung übersetzt, da nur die typische 4-Peak-Struktur in der entsprechenden CEP-integrierten Ionenimpulsverteilung beobachtet wird, siehe Abb. 5.9 (e). Da die Impulse von  $\mathbf{p}_{ion}$  sich aus der Faltung der Verteilungen von  $\mathbf{p}_1$  und  $\mathbf{p}_2$  ergeben, verschmiert die Aufteilung

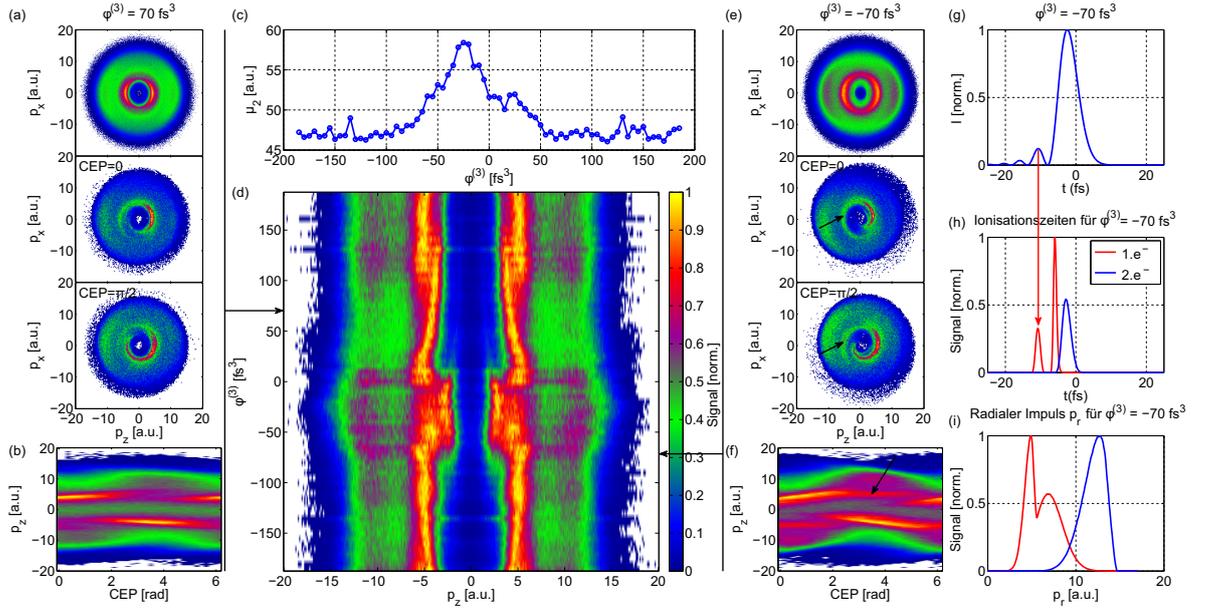


Abbildung 5.9: Simulierte Abhängigkeit der  $\text{He}^{2+}$ -Impulsverteilungen von der spektralen Phase dritter Ordnung ( $\phi^{(3)}$ ) für einen Laserpuls mit  $\tau = 4.38$  fs ( $\phi^{(2)} = 0$ ): (a) wie in Abb. 5.4 für einen Laserpuls  $\phi^{(3)} = 70$  fs<sup>3</sup>, (b) CEP-Abhängigkeit der Impulsverteilung in Richtung von  $p_z$  für  $\phi^{(3)} = 70$  fs<sup>3</sup> (summiert über die anderen Impulskomponenten), (c) Varianz der Verteilung entlang  $p_z$  in Abhängigkeit von  $\phi^{(3)}$ , (d) Impulsverteilung summiert über  $|p_x| < 2$  a.u. in Abhängigkeit von  $\phi^{(3)}$ , (e) wie (a) für  $\phi^{(3)} = -70$  fs<sup>3</sup>, (f) wie (b) für  $\phi^{(3)} = -70$  fs<sup>3</sup>, (g) Einhüllende der Intensität für  $\phi^{(3)} = -70$  fs<sup>3</sup>, (h) Ionisationszeiten des ersten und zweiten emittierten Elektrons (summiert über alle Werte der CEP), (i) Impulsverteilungen des radialen Impulses,  $p_r = \sqrt{(p_z^2 + p_x^2)}$ , des ersten und zweiten Elektrons (summiert über alle Werte der CEP).

von  $\mathbf{p}_1$  in der endgültigen Impulsverteilung von  $\mathbf{p}_{ion}$ .

Ein weiterer interessanter Effekt, der in Abb. 5.9 (e)–(i) gezeigt wird, ist, dass die erhöhte Amplitude von Vorpulsen für größere negative TOD mit dem Auftreten von zusätzlichen Peaks in der CEP-aufgelösten Ionenimpulsverteilung zusammenfällt. Diese Peaks sind den in der Messung beobachteten CEP-abhängigen Merkmalen sehr ähnlich, die von den Simulationen mit Fourier-limitierten Pulsen (siehe Kap. 5.3.4) nicht reproduziert werden, siehe Abb. 5.4 (g)–(j). Vergleicht man Abb. 5.4 (i) und Abb. 5.9 (e) zeigt sich, dass für  $\phi^{(3)} = -70$  fs<sup>3</sup> ein ähnliches Merkmal über einen großen Bereich von CEPs in der Verteilung bei  $p_z \approx 5$  a.u. beobachtet werden kann (markiert durch die Pfeile). Für die CEP-integrierte Ionenimpulsverteilung, die mit negativem  $\phi^{(3)}$  erhalten wurde, verschmelzen die 6 Peaks jedoch fast vollständig zu einer 4-Peak-Struktur.

Somit ist es für den hier untersuchten Parameterbereich nicht möglich, durch Variation einzelner Parameter eine vollständige Übereinstimmung zwischen Simulation und Messung sowohl für die CEP-aufgelösten als auch für die CEP-integrierten Verteilungen zu erzielen. Dies deutet darauf hin, dass die in dem Experiment beobachteten Merkmale (siehe Abb. 5.4) wahrscheinlich durch kleine Abweichungen von einer vollkommen flachen spektralen Phase verursacht werden.

## Kapitel 6

# Das $\text{HeH}^+$ -Molekül: Der heteronukleare Grenzfall der Starkfeldionisation

*Die laserinduzierte Fragmentation des grundlegendsten polaren Moleküls, dem Heliumhydridmolekülion  $\text{HeH}^+$ , wird für eine Reihe von Wellenlängen, Intensitäten und Isotopen untersucht. Im starken Gegensatz zu symmetrischen Molekülen zeigen Experiment und Theorie für  $\text{HeH}^+$ , dass in diesem Molekül die Anregung von Vibrationszuständen und nicht die elektronische Anregung die Fragmentation entscheidend beeinflusst.*

### 6.1 Einleitung

#### 6.1.1 Das $\text{HeH}^+$ -Molekül als asymmetrisches Molekül

Das Verständnis und die Kontrolle von chemischen Bindungen in Molekülen ist eines der großen Anliegen der Naturwissenschaften. Die Chemie klassifiziert die Bindungen danach, wie stark und in welche Richtung die Elektronen zwischen den beteiligten Atomen verschoben sind, da dies maßgeblich die Eigenschaften und Reaktionen eines Moleküls bestimmt.

Das Lehrbuchbeispiel für den Grenzfall einer perfekt symmetrischen Verteilung der Elektronen ist das Wasserstoffmolekülion  $\text{H}_2^+$ . Von ebenso hoher Bedeutung für das Verständnis ist der andere Extremfall, bei dem die Elektronen einer chemischen Bindung stark asymmetrisch verteilt sind, aber dennoch eine stabile Verbindung formen.

Den Prototyp für diese Situation findet man im  $\text{HeH}^+$ -Molekülion, dem einfachsten heteronuklearen polaren Molekül. Dieses System weist eine hohe elektronische Asymmetrie auf, da die Elektronen stark auf der Seite des Heliumkerns lokalisiert sind.

Das  $\text{HeH}^+$  stellt aus einer Reihe von Gründen ein besonders bemerkenswertes Molekül dar. Als Ion bildet es eine stabile Verbindung, obwohl Edelgase im Vergleich zu allen anderen Elementen kaum chemische Bindungen eingehen und das neutrale  $\text{HeH}$ -Molekül instabil ist. Der erste experimentelle Nachweis des  $\text{HeH}^+$ -Moleküls gelang im Jahr 1925 Hogness und Lunn, die im Massenspektrum eines ionisierten Gasgemisches aus Helium- und Wasserstoffgas das  $\text{HeH}^+$  detektierten [166].

Als einfachstes heteronukleares Molekül ist das  $\text{HeH}^+$  für das Verständnis von Molekülbin-

dungen und Elektronenkorrelationen wichtig [167]. Darüber hinaus hat das HeH<sup>+</sup> eine entscheidende Bedeutung für die Chemie astronomischer Objekte und insbesondere für das Verständnis des frühen Universums. Aufgrund der hohen Bindungsenergie und seiner Bestandteile Wasserstoff und Helium, den ersten beiden Elementen im Universum sowie den Elementen mit der größten Häufigkeit, wird angenommen, dass das HeH<sup>+</sup> das erste Molekülion nach der Entstehung des Universums war [23]. Es gibt zahlreiche Vorhersagen über die Existenz des Moleküls in vielen astronomischen Objekten, wie planetarischen Nebeln [168], weißen Zwergen [169] oder metallarmen Sternen [170]. Ein großes Rätsel ist daher, warum das Molekül bisher in astronomischen Spektren nicht nachgewiesen werden konnte [171].

Ebenfalls interessant ist, dass das Isotop HeT<sup>+</sup> eine wichtige Rolle für die Bestimmung der Masse des Elektronen-Neutrinos hat. Eines der empfindlichsten Experimente zur Bestimmung der Neutrinomasse stellt die Messung des Elektronenspektrums des  $\beta^-$ -Zerfalls von T<sub>2</sub> dar [172]. Die Interpretation des gemessenen Elektronenspektrums hängt aufgrund von T<sub>2</sub>  $\rightarrow$  <sup>3</sup>HeT<sup>+</sup> +  $\bar{\nu}_e$  + e<sup>-</sup> auch von der genauen Kenntnis der elektronischen Zustände des Reaktionsproduktes HeT<sup>+</sup> ab [173].

### 6.1.2 Das HeH<sup>+</sup>-Molekül als Modellsystem

Für das Studium des HeH<sup>+</sup> in starken Laserfeldern ist besonders die Asymmetrie dieses Moleküls von herausragendem Interesse. Dies wird vor allem im Vergleich zum H<sub>2</sub><sup>+</sup>-Molekül deutlich, das auch in der Starkfeldphysik von Molekülen eine fundamentale Bedeutung hat und als Prototyp der Wechselwirkung von Molekülen mit Laserfeldern dient (siehe Kap. 2.8.4). Viele wichtige Effekte wurden zuerst für H<sub>2</sub><sup>+</sup> beobachtet und erklärt [174]. Der Grund dafür ist, dass das H<sub>2</sub><sup>+</sup> das einfachste molekulare System ist und eine perfekte Symmetrie aufweist. Wesentliche Eigenschaften, die in komplexeren Molekülen relevant sind, treten für H<sub>2</sub><sup>+</sup> allerdings nicht auf.

Dagegen besitzt das HeH<sup>+</sup> einige Merkmale komplexerer molekularer Verbindungen. Aus der starken elektronischen Asymmetrie ergibt sich ein permanentes Dipolmoment (siehe Abb. 6.1). Dies ist ein wesentlicher Unterschied zum H<sub>2</sub><sup>+</sup> und beeinflusst entscheidend die Kopplung des Moleküls an ein äußeres Feld [175]. Eine weitere Besonderheit besteht in der Tatsache, dass das HeH<sup>+</sup> ein Zweielektronensystem ist.

Während das H<sub>2</sub><sup>+</sup> das Referenzsystem für die Beschreibung symmetrischer Moleküle darstellt, ist das HeH<sup>+</sup> das grundlegendste System für asymmetrische Moleküle<sup>1</sup>. Viele andere polare Moleküle liegen zwischen diesen beiden Extremfällen, der perfekten Symmetrie in H<sub>2</sub><sup>+</sup> und der extremen Asymmetrie in HeH<sup>+</sup>.

Aus dem besonderen Stellenwert des HeH<sup>+</sup> als Modellsystem ergibt sich an seiner theoretischen Beschreibung ein hohes Interesse. Tatsächlich wurde es in vielen Simulationen als Modell eines Moleküls in einem starken Laserfeld verwendet, u.a. für die Dissoziation [175; 176], Ionisation [177; 178; 179; 180; 181; 182], Doppelionisation [183; 184; 185] und die Erzeugung von hohen Harmonischen [186].

Dieser Vielzahl von theoretischen Aktivitäten um HeH<sup>+</sup> steht das Fehlen von experimentellen Ergebnissen gegenüber. Bisher gab es keine Experimente von HeH<sup>+</sup> in starken Laserfeldern. Das einzige Experiment, welches die Wechselwirkung mit Licht behandelte, betrachtete die

<sup>1</sup>HD<sup>+</sup> ist in diesem Sinne kein asymmetrisches Molekül, da es nur eine Massensymmetrie aufweist und isoelektronisch zu H<sub>2</sub><sup>+</sup> ist.

Einphotonendissoziation von HeH<sup>+</sup> bei Photonenenergien von 38,7 eV und wurde an einem Freie-Elektronen-Laser durchgeführt [187]. Aus diesen Messergebnissen wurde der Wirkungsquerschnitt für die Einphotonendissoziation extrahiert und detailliert mit theoretischen Arbeiten verglichen [173; 188; 189; 190].

Der Grund für die Abwesenheit von Experimenten mit HeH<sup>+</sup> ist, dass seine Erzeugung sehr aufwendig ist. Da die Experimente in der Starkfeld-Laserphysik oft ohnehin sehr anspruchsvoll sind, wählt man in den meisten Fällen für die Untersuchung der Wechselwirkung von Molekülen mit Laserfeldern Systeme aus, die relativ einfach aus der Gasphase hergestellt werden können. Auch das Molekülion H<sub>2</sub><sup>+</sup> wird typischerweise über Ionisation des Gasmoleküls H<sub>2</sub> in demselben Laserpuls erzeugt, der danach zur Untersuchung des erzeugten Molekülions genutzt wird [51]. Dies ist für HeH<sup>+</sup> nicht möglich, da das neutrale HeH nicht stabil ist. Somit muss das HeH<sup>+</sup> in einer Ionenquelle mit Hilfe eines Gasgemisches aus Helium und Wasserstoff erst hergestellt werden [166; 191; 13].

Eine weitere Besonderheit des HeH<sup>+</sup>-Moleküls ist, dass die zwei verschiedenen Isotope von Wasserstoff und Helium vier verschiedene Isotopenzusammensetzungen<sup>2</sup> des HeH<sup>+</sup> ermöglichen: <sup>4</sup>HeH<sup>+</sup>, <sup>3</sup>HeH<sup>+</sup>, <sup>4</sup>HeD<sup>+</sup>, <sup>3</sup>HeD<sup>+</sup>. Für Experimente mit starken Laserfeldern bietet sich die Möglichkeit, systematisch den Einfluss der Massenverteilung im Molekül zu studieren und macht dieses System für asymmetrische Laserfelder wie ultrakurze Laserpulse mit definierter CEP sowie Zwei-Farben-Laserfelder besonders interessant.

Aus diesen Eigenschaften des HeH<sup>+</sup> ergeben sich als Schwerpunkt dieser Arbeit die wichtigen Fragen:

- Wie beeinflusst die Asymmetrie und das starke permanente Dipolmoment des HeH<sup>+</sup> die Interaktion in einem starken Laserfeld?
- Kann eine Abhängigkeit von den unterschiedlichen Massenverhältnissen der Isotope in einem Experiment beobachtet werden?

### 6.1.3 Eigenschaften des HeH<sup>+</sup>-Moleküls

Das molekulare System des HeH<sup>+</sup> besteht aus zwei Kernen und zwei Elektronen. Der elektronische Grundzustand  $X^1\Sigma^+$  ist ein bindender Zustand und weist ein Potentialminimum bei einem Kernabstand von  $R = 1,45$  a.u. auf (siehe Abb. 6.1 (b)) [192]. Im Fall des <sup>4</sup>HeH<sup>+</sup> gibt es 11 gebundene Vibrationszustände [193]. Für den elektronischen Grundzustand ist nahezu die gesamte elektronische Ladungsverteilung am Heliumion konzentriert (siehe Abb. 6.1 (c)). Es gibt eine größere Anzahl von angeregten Zuständen [194]. Für den niedrigsten angeregten Zustand  $A^1\Sigma^+$  ist ein Elektron am Proton lokalisiert (siehe Abb. 6.1 (c-d)).

Aus der starken Ladungsasymmetrie der Atomkerne des HeH<sup>+</sup> folgt, dass die Energieseparation zwischen den beiden relevanten Zuständen  $X^1\Sigma^+$  und  $A^1\Sigma^+$  auch für  $R \rightarrow \infty$  sehr groß ist. Die Energiedifferenz beträgt 26 eV am internuklearen Gleichgewichtsabstand. Hinzu kommt, dass die Dipolkopplung für Abstände, die größer sind als der Gleichgewichtsabstand, sehr schnell abnimmt [194]. Dies führt insgesamt dazu, dass die Dynamik auf den elektronischen Grundzustand beschränkt ist und in HeH<sup>+</sup> die elektronische Anregung für viele Laserwellenlängen ( $\hbar\omega_L \ll |U_{A^1\Sigma^+} - U_{X^1\Sigma^+}|$ ) nur eine geringe Wahrscheinlichkeit besitzt [175].

Wie bereits erläutert, bewirkt die Ladungsverteilung von HeH<sup>+</sup> (siehe Abb. 6.1 (a)), dass das

<sup>2</sup>In dieser Arbeit beziehen sich die Bezeichnungen HeH<sup>+</sup> und HeD<sup>+</sup> auf das Isotop <sup>4</sup>HeH<sup>+</sup> bzw. <sup>4</sup>HeD<sup>+</sup>, soweit es nicht anders angegeben wird.

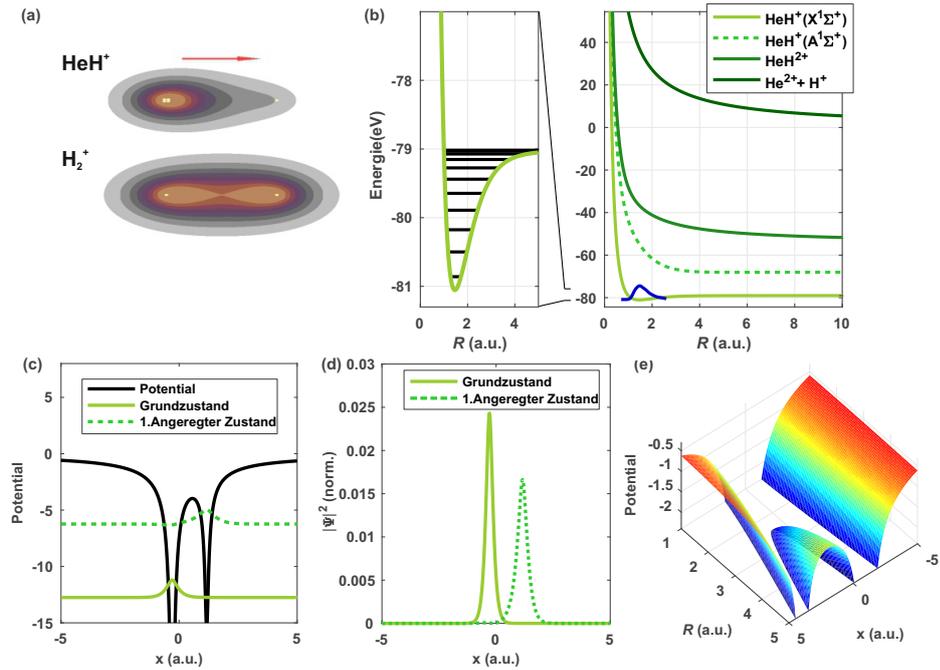


Abbildung 6.1: Das HeH<sup>+</sup>-Molekül: (a) Vergleich der elektronischen Ladungsverteilung in HeH<sup>+</sup> und H<sub>2</sub><sup>+</sup> mit eingezeichnetem permanentem Dipolmoment für HeH<sup>+</sup> (roter Pfeil), (b) Potentialflächen für HeH<sup>+</sup> und HeH<sup>2+</sup> mit Darstellung des initialen nuklearen Wellenpakts (blau) und der Lage der Vibrationszustände. (c) Eindimensionales Modellpotential für zwei Kerne mit Kernladungszahl  $Z_1 = 2$  und  $Z_2 = 1$  und einem Abstand  $R = 1,45$  a.u. (Gleichgewichtsabstand von HeH<sup>+</sup>) mit den Wellenfunktionen. Dies entspricht nicht den exakten Bindungsverhältnissen in HeH<sup>+</sup> aus (b). (d) Betragsquadrat der Wellenfunktionen und (e) Modellpotential als Funktion des Kernabstandes  $R$  und der elektronischen Koordinate  $x$ .

Molekül über ein permanentes Dipolmoment verfügt. Für eine diskrete Ladungsverteilung kann es als Summe über die Einzeldipolmomente aller Ladungsträger berechnet werden. Der Dipol jeder Ladung wird durch die Größe der Ladung  $q_i$  und den Ortsvektor relativ zum Schwerpunkt charakterisiert  $\mathbf{p} = \sum_{i=1}^n q_i \mathbf{r}_i$ .

Auf diese Weise kann das Dipolmoment von HeH<sup>+</sup> abgeschätzt werden [175]. Für den Grundzustand ist die Annahme gerechtfertigt, dass beide Elektronen näherungsweise vollständig am Heliumkern lokalisiert sind. Mit  $q_{He}=2$ ,  $q_H=1$  und der Ladung eines Elektrons  $q_e = -1$  sowie dem Massenschwerpunkt bei  $\frac{1}{5}R$  ergibt sich als Projektion auf die Molekülachse  $\mathbf{p}_{HeH^+} = \mathbf{p}_{Kern} + \mathbf{p}_{Elek} = q_{He}(-\frac{1}{5}R)\mathbf{e}_r + q_H\frac{4}{5}R\mathbf{e}_r + 2q_e(-\frac{1}{5}R)\mathbf{e}_r = \frac{4}{5}R\mathbf{e}_r$ . Das Dipolmoment zeigt in Richtung des Wasserstoffkerns (siehe Abb. 6.1 (a)).

Dieses Ergebnis stimmt für  $R > 4$  mit dem quantenmechanischen Ergebnis [194] gut überein (siehe Abb. 6.2). Für Kernabstände  $R < 4$  ist das exakte Dipolmoment etwas geringer, da sich dann die Anziehungskraft des Protons stärker bemerkbar macht.

Analog zum HeH<sup>+</sup> kann das Dipolmoment der anderen Isotope, wie HeD<sup>+</sup>, berechnet werden. Für HeD<sup>+</sup> liegt der Schwerpunkt bei  $\frac{1}{3}R$ , sodass sich näherungsweise für das Dipolmoment  $\mathbf{p}_{HeD^+} = \frac{2}{3}R\mathbf{e}_r$  ergibt. Dieser Wert ist damit etwas kleiner als für HeH<sup>+</sup> und beeinflusst die Kopplungsstärke der Vibrationszustände (siehe Kap. 6.4).

Das permanente Dipolmoment und die hohe elektronische Anregungsenergie von HeH<sup>+</sup> haben einen wesentlichen Einfluss auf das Verhalten des HeH<sup>+</sup> in starken Laserfeldern. Das

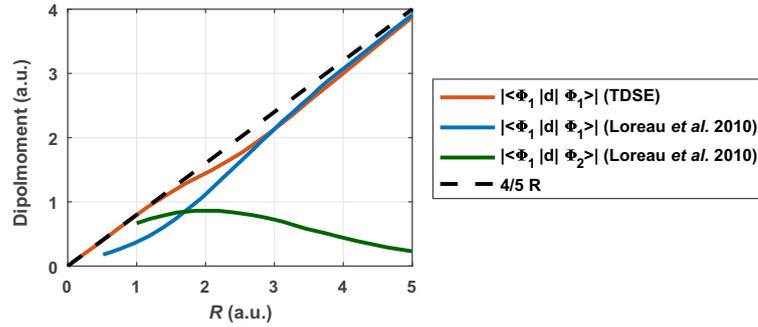


Abbildung 6.2: Dipolmoment für HeH<sup>+</sup>: Dipolmatrixelement für die Anregung auf dem elektronischen Grundzustand von Loreau *et al.* [194] aus dreidimensionaler Berechnung (blaue Kurve) im Vergleich mit dem Ergebnis des verwendeten TDSE-Modells (rote Kurve) (siehe Anhang 8.2). Eine einfache Abschätzung des Dipols für den Grundzustand ermöglicht die Approximation  $4/5R$  (unterbrochene Linie) [175]. Die grüne Kurve zeigt das Dipolmatrixelement für eine Anregung vom elektronischen Grundzustand auf den ersten angeregten Zustand.

permanente Dipolmoment ermöglicht die direkte Kopplung von Vibrationszuständen im elektronischen Grundzustand.

Den Einfluss des permanenten Dipolmoments auf die laserinduzierte Dissoziation von HeH<sup>+</sup> analysierten theoretisch Ursrey *et al.* [175; 176]. Sie stellten fest, dass für längere Wellenlängen ( $\lambda \geq 1200$  nm) eine höhere Dissoziationswahrscheinlichkeit zu erwarten ist, da die Amplitude von Dipolübergängen von gebundenen Vibrationszuständen zu freien Zuständen mit sinkender Photonenenergie ansteigt. Dies bestätigt sich auch in der vorliegenden Arbeit (siehe Kap. 6.3.3).

Die Rolle der elektronischen Anregung in der Ionisation wurde von Dehghanian *et al.* betrachtet [181]. Sie zeigten in TDSE-Simulationen mit festen Kernabständen, dass die  $R$ -abhängige Ionisationswahrscheinlichkeit ein Maximum zwischen  $R = 3$  a.u. und  $R = 5$  a.u. aufweist. Dehghanian *et al.* erklärten dies als Folge des Populationstransfers zwischen dem vom Starkeffekt verschobenen Grundzustand und dem angeregten Zustand (siehe Kap. 6.3.4).

## 6.2 Experiment mit HeH<sup>+</sup>

Die Untersuchung des HeH<sup>+</sup> in starken Laserfeldern ist nur unter Nutzung von Ionen möglich (siehe Kap. 6.1.1). Für die Umsetzung eines Starkfeldexperiments mit HeH<sup>+</sup> wurde die in Kap. 3.1 beschriebene Ionenstrahlapparatur verwendet. Die Besonderheiten des Experiments mit HeH<sup>+</sup> werden im Folgendem beschrieben.

Die Schwierigkeiten in der Realisierung eines HeH<sup>+</sup>-Experiments bestehen in der Kombination:

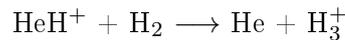
- der geringen erreichbaren Dichte von HeH<sup>+</sup>,
- dem unvermeidbaren Anteil anderer Ionen in einem HeH<sup>+</sup>-Strahl,
- der hohen benötigten Laserintensität und
- der unterschiedlichen Massenverhältnisse der Fragmente von HeH<sup>+</sup>.

### 6.2.1 Erzeugung von HeH<sup>+</sup>

Die Erzeugung des HeH<sup>+</sup> unterscheidet sich von der Erzeugung anderer Ionenstrahlen, wie z.B. von He<sup>+</sup> oder H<sub>2</sub><sup>+</sup>, da die Verbindung erst in der Ionenquelle erzeugt werden muss. HeH<sup>+</sup> kann in einem Plasma aus einem Gasgemisch von Helium- und Wasserstoffgas hergestellt werden [166]. Dabei muss in der Reaktion



ein vorher in der Ionenquelle ionisiertes H<sub>2</sub><sup>+</sup> auf ein Heliumatom treffen [74]. Das dabei gebildete HeH<sup>+</sup> kann dann aus der Ionenquelle extrahiert werden. Vor der Extraktion kann es jedoch zu einer weiteren Stoßreaktion



kommen, in der das HeH<sup>+</sup> auf ein neutrales H<sub>2</sub>-Molekül trifft und unter Bildung von H<sub>3</sub><sup>+</sup> zerfällt. Um die Wahrscheinlichkeit für diese Reaktion zu minimieren, muss der Druck von H<sub>2</sub> in der Ionenquelle gering sein. Es wurde gezeigt, dass dafür ein Verhältnis von 1 : 9 zwischen Wasserstoff und Helium optimal ist [74].

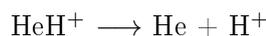
Der aus der Duoplasmatron-Ionenquelle extrahierbare HeH<sup>+</sup>-Ionenstrom hängt stark vom Druck in der Ionenquelle ab. Den Großteil des Stroms machen andere von der Ionenquelle emittierte Ionen aus. Um die HeH<sup>+</sup>-Ionen von diesen Ionen zu separieren, wird der Wienfilter eingesetzt, der die Ionen nach dem Verhältnis von Ladung und Masse der Ionenspezies selektiert. Der HeH<sup>+</sup>-Ionenstrahl kann daher auch andere Ionen mit dem gleichen Ladungs-Masse-Verhältnis enthalten.

Besonders kritisch ist dies für die Erzeugung eines HeD<sup>+</sup>-Strahls (siehe Kap. 6.4). Da in diesem Fall ein Gasgemisch von Helium mit 10 % D<sub>2</sub> in der Ionenquelle benötigt wird, enthält der Ionenstrahl nach dem Wienfilter neben dem angestrebten HeD<sup>+</sup> als unvermeidbares Nebenprodukt D<sub>3</sub><sup>+</sup> mit einer sehr hohen Intensität, das dieselbe Massenzahl wie <sup>4</sup>HeD<sup>+</sup> hat.

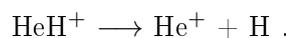
Für den HeH<sup>+</sup>-Ionenstrahl nach dem Wienfilter kann unter optimalen Bedingungen mit Hilfe eines Faraday-Cups eine Stromstärke von 10 nA gemessen werden. Für die Interaktion mit dem fokussierten Laserstrahl werden für HeH<sup>+</sup> in der Interaktionszone Ionenströme  $\lesssim 1$  nA erreicht, da Blenden zur Einschränkung der Ausdehnung und der Divergenz des Ionenstrahls den Ionenstrom weiter reduzieren.

### 6.2.2 Detektion der Fragmente von HeH<sup>+</sup>

Für die Fragmentation des HeH<sup>+</sup> in einem Laserfeld sind verschiedene Pfade möglich. Abhängig davon, an welchen Fragmenten die Elektronen verbleiben, gibt es zwei Dissoziationswege:



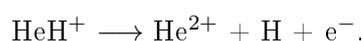
und



In gleicher Weise ergeben sich zwei verschiedene Reaktionen für die Einfachionisation:

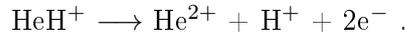


und



Aufgrund der hohen Energiedifferenz zwischen dem Grundzustand und dem angeregten elektronischen Zustand kann erwartet werden, dass sowohl für die Dissoziation als auch die Ionisation die Wahrscheinlichkeit für die Reaktionen, bei dem ein Elektron am Proton verbleibt, sehr gering ist.

Für sehr intensive Laserfelder ist zusätzlich die Doppelionisation möglich:



Die für die Ionisation von HeH<sup>+</sup> benötigte Intensität kann über die kritische Feldstärke (siehe Kap. 2.5, Gl. 2.13) abgeschätzt werden. Das erste und zweite Ionisationspotential für das Molekül im Gleichgewichtsabstand ( $R \approx 1.45$  a.u.) beträgt 44 eV und 73 eV. Für die Einfachionisation aus dem Grundzustand ergibt sich mit der eindimensionalen Abschätzung  $1,5 \cdot 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>. Auch wenn das Ionisationspotential für größere  $R$  abnimmt, zeigt diese Abschätzung, dass sehr hohe Intensitäten für die Fragmentation des HeH<sup>+</sup> nötig sind. Diese hohen Feldstärken werden nur in einem kleinen Bereich des Laserfokus erreicht, sodass das aktive Fokusbereich, welches zum Ionisationssignal von HeH<sup>+</sup> beiträgt, begrenzt ist.

Die geringe Targetdichte (siehe Kap. 3.6) und die hohe benötigte Intensität resultieren in sehr geringen Ereignisraten. Mit der verwendeten Laserrepetitionrate von 1 kHz liegt sie unter einem Ereignis pro Sekunde (siehe Abb. 6.3). Dadurch werden sehr lange Messzeiten notwendig, die nur bei einer hohen Stabilität des Lasersystems und der Ionenquelle realisiert werden können.

Für die Detektion der Fragmente von HeH<sup>+</sup> wurde der Detektor (siehe Kap. 3.5) in einer Entfernung von 913 mm zur Interaktionszone mit dem Laser positioniert. Wie in Kap. 3.4 erklärt, erfolgt die Identifizierung der verschiedenen Fragmente über ihre zeitliche und räumliche Separation. Mit Spektrometerpotentialen von  $\approx 100$ -200 V kann eine gute zeitliche Trennung der Fragmente von HeH<sup>+</sup> erreicht werden.

Die räumliche Verteilung der Fragmente auf dem Detektor gestaltet sich für das Molekül aufgrund des Massenverhältnisses der Fragmente deutlich schwieriger als für symmetrische Moleküle, wie z.B. H<sub>2</sub><sup>+</sup>. Die räumliche Separation der Fragmente und damit das Potential an den Deflektoren muss groß genug sein, damit die Detektion der schweren Fragmente (He<sup>+</sup>) mit geringer Kinetic Energy Release (KER) so wenig wie möglich durch den Faraday-Cup verhindert wird (siehe Kap. 3.5). Aufgrund des Massenverhältnisses von 4 : 1 erfährt jedoch das leichte Fragment (H<sup>+</sup>) eine vierfach größere Ablenkung, sodass ein kleiner Teil der H<sup>+</sup>-Fragmente der Ionisation mit hoher KER und hohem Emissionswinkel nur den Rand des Detektors treffen und teilweise nicht detektiert werden. Die Wahl von ca. 40 V für das Deflektionspotential stellt einen Kompromiss dar, um die Detektion beider Fragmente zu maximieren.

An dieser Diskussion wird deutlich, dass das Isotop <sup>3</sup>HeD<sup>+</sup> das ideale Molekül für dieses Experiment wäre (siehe Kap. 6.1.1). Zudem können andere Molekülonen aus der Ionenquelle effektiv durch den Wienfilter gefiltert werden (siehe Kap. 6.4).

Auch durch die Wahl der Laserpolarisation besteht Potential zur Optimierung der Detektion der verschiedenen Fragmente. Die lineare Laserpolarisation wird über eine Halbwellenplatte fast parallel zur Propagationsrichtung des Ionenstrahls ausgerichtet. Die Impulsänderung der Fragmente des Moleküls überträgt sich dann hauptsächlich auf diese Impulskomponente, die über die Flugzeit der Fragmente detektiert wird. Die Messung der Flugzeit ist genauer und praktisch nicht eingeschränkt, sodass wesentlich größere Geschwindigkeitsänderungen verschiedener Fragmente detektiert werden können als über die Auftreffposition auf dem Detektor.

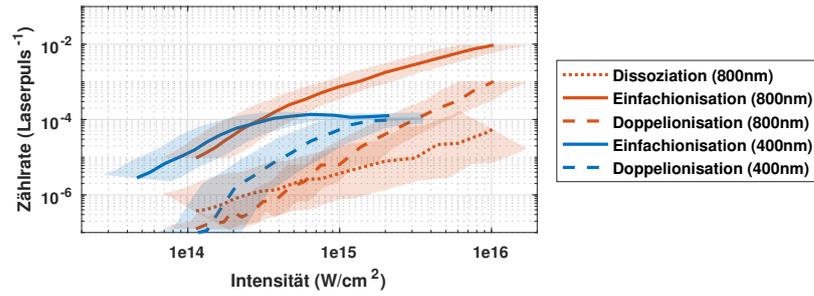


Abbildung 6.3: Experimentelle Zählrate für die verschiedenen Fragmentationspfade von HeH<sup>+</sup> in Abhängigkeit von der maximalen Fokusintensität für 400 nm und 800 nm. Die experimentelle Zählrate wurde um den Effekt des veränderten Fokusvolumens der intensitätsabhängigen Messung korrigiert.

Während der Messung der HeH<sup>+</sup>-Laserinteraktion wurde ein sehr hoher Anteil von He und H<sup>+</sup> detektiert, der nicht mit dem Laser korreliert. Diese Fragmente entstehen vermutlich durch Stöße des HeH<sup>+</sup>-Strahls mit dem Hintergrundgas aus angeregten Zuständen auf dem Weg vom Wienfilter bis zum Detektor [189]. Es handelt sich also genau um die gleichen Fragmente, die aus der Laserwechselwirkung von HeH<sup>+</sup> detektiert werden sollen. Da sie nicht mit dem Laser korreliert sind, können sie in der Auswertung im Prinzip leicht diskriminiert werden. Ihre hohe Intensität sorgt jedoch für eine hohe Belastung des Detektors und erschwert die Optimierung der Messung, da das eigentliche Messsignal überdeckt wird.

### 6.2.3 Ergebnisse für HeH<sup>+</sup>

Um in den Experimenten zur Wechselwirkung von HeH<sup>+</sup> mit intensiven Laserfeldern verschiedene Anregungswege in der Fragmentation des Moleküls zu testen, wurden zwei verschiedene Wellenlängen ausgewählt, die eine Anregungen von Vibrationszuständen erlauben bzw. unterbinden (siehe Abb. 6.1 (b)). Neben der Laserwellenlänge von 800 nm kamen Laserpulse der zweiten Harmonischen von 800 nm zum Einsatz (siehe Anhang 8.3.1). Ein 200  $\mu\text{m}$  dicker Betabariumborat-Kristall im kollimierten 800 nm-Strahl produzierte mit einer Effizienz von über 30% Laserpulse bei 400 nm. Mehrere dichroitische Spiegel dienten zur Separation der 800 nm- und 400 nm-Strahlung. Die Charakterisierung der 400 nm-Pulse mit einem FROG (engl. Frequency-Resolved Optical Gating) [195] zeigte eine Pulsdauer von  $52 \pm 7$  fs.

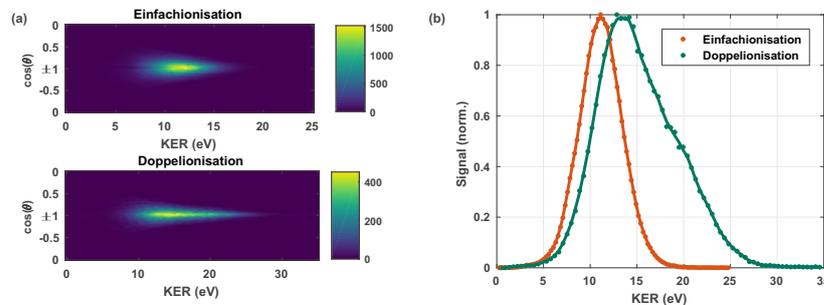


Abbildung 6.4: Einfach- und Doppelionisation von HeH<sup>+</sup> mit 800 nm bei der maximalen Fokusintensität von  $\approx 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>: (a) KER-cos( $\theta$ ) abhängiges Spektrum, (b) Vergleich der normierten KER-Verteilung für Einfach- und Doppelionisation.

Für beide Wellenlängen erfolgte die systematische Änderung der Laserintensität durch Variation der Position des Laserfokus relativ zum Ionenstrahl (siehe Kap. 3.3). Dies hat gegenüber anderen Methoden den Vorteil, dass das Sinken der Zählrate bei geringerer Intensität durch das größere Fokusvolumen teilweise ausgeglichen wird. Der Nachteil ist, dass für jeden Messpunkt die Intensität über die Ausdehnung des fokussierten Laserstrahls an der Position des Ionenstrahls interpoliert werden muss und damit eine größere Unsicherheit aufweist.

Die experimentelle Zählrate, um den Effekt des veränderten Fokusvolumens korrigiert, ist in Abb. 6.3 in Abhängigkeit der abgeschätzten Laserintensität dargestellt. Der dominierende Fragmentationskanal ist für beide Wellenlängen die Einfachionisation  $\text{HeH}^+ \rightarrow \text{He}^+ + \text{H}^+ + \text{e}^-$ . Für Intensitäten über  $\approx 10^{15} \text{ W/cm}^2$  wurde zusätzlich ein intensives Signal der Doppelionisation detektiert. Mit 800 nm konnte zudem ein schwaches Dissoziationssignal beobachtet werden. Die Zählrate war allerdings sehr gering und die Detektion der neutralen Helium-Fragmente wurde teilweise vom Faraday-Cup verhindert. Auf diese Weise war eine systematische Auswertung der Dissoziation nicht möglich.

Entsprechend den Erwartungen konnte weder für die Ionisation noch für die Dissoziation der Kanal beobachtet werden, bei dem ein Elektron am Wasserstoffatom verbleibt. Auch die Vorhersagen von Ursrey *et al.* [175], dass die Dissoziationswahrscheinlichkeit bei einer Wellenlänge von 800 nm sehr gering ist, bestätigt sich.

Für jedes detektierte Ereignis wurde aus dem Auftreffort und der Flugzeit die Impulsänderung der Fragmente relativ zum Ionenstrahl rekonstruiert. Aus den gemessenen Impulsen der in Koinzidenz detektierten Fragmente erfolgte die Ermittlung der KER (engl. Kinetic Energy Release) und des Winkels zur Laserpolarisation  $\theta$ . Die KER- und  $\cos(\theta)$ -abhängigen Verteilungen der Einfach- und Doppelionisation von HeH<sup>+</sup> mit 800 nm bei der maximalen Fokusintensität sind in Abb. 6.4 dargestellt.

In den folgenden Kapiteln werden für die beiden Reaktionskanäle, die mit guter Statistik detektiert wurden, die Messergebnisse analysiert, interpretiert und mit Simulationsergebnissen verglichen.

## 6.3 Einfachionisation von HeH<sup>+</sup>

### 6.3.1 Intensitätsabhängige KER-Verteilung der Einfachionisation

Die KER-Spektren der Einfachionisation von HeH<sup>+</sup> wurden für einen großen Intensitätsbereich aufgenommen. Die KER- und  $\cos(\theta)$ -abhängigen Verteilungen für einige Intensitäten sind in Abb. 6.5 (a) dargestellt. Das gemessene Ionisationssignal wird dabei aufgrund des in einer Messung unvermeidbaren Intensitätsvolumeneffekts von einem großen Bereich von Intensitäten bis zu der maximalen Fokusintensität erzeugt.

Abb. 6.5 (b) zeigt die Entwicklung der über  $\theta$  integrierten KER-Verteilungen in Abhängigkeit der Intensität. Für geringe Intensitäten beginnt das Ionisationssignal bei 4 eV und hat ein Maximum bei 6,5 eV. Für steigende Intensitäten verschiebt sich das Maximum zu 11 eV, wobei sich das KER-Spektrum bis zu 17 eV erstreckt. Für Intensitäten ab  $\approx 5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  bleibt die Position des Maximum der KER-Verteilung konstant. Die Einfachionisation ist dann gesättigt und die Doppelionisation setzt ein (siehe Kap. 6.5).

Um einen Einblick in die gemessene Dynamik der Einfachionisation zu erhalten, ist es hilfreich, die KER-abhängigen Verteilungen in eine  $R$ -abhängige Verteilung zu konvertieren. Dazu

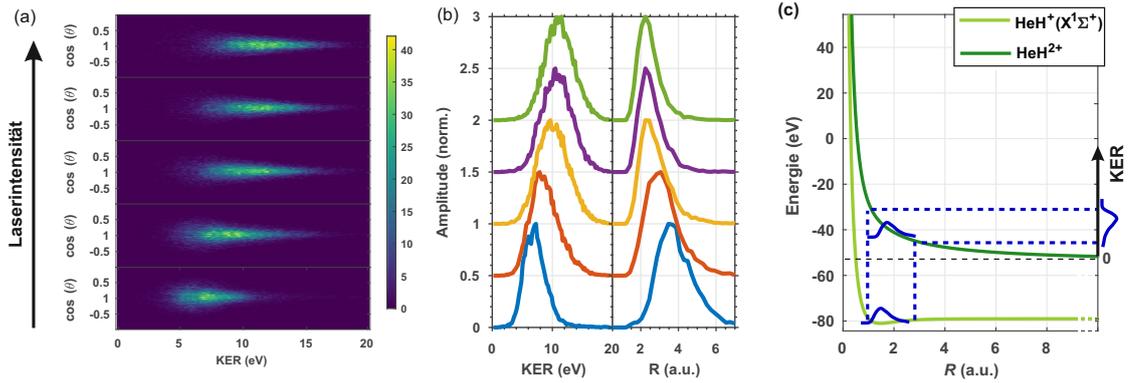


Abbildung 6.5: Intensitätsabhängigkeit der Einfachionisation von HeH<sup>+</sup> mit 800 nm-Pulsen: (a) KER- und  $\cos(\theta)$ -abhängigen Verteilungen für verschiedene maximale Fokusintensitäten ( $1 \cdot 10^{15}$ ,  $1.5 \cdot 10^{15}$ ,  $2 \cdot 10^{15}$ ,  $2.5 \cdot 10^{15}$ ,  $5 \cdot 10^{15}$ ,  $20 \cdot 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>) (b) KER-Spektrum (links) der in (a) gezeigten Intensitäten sowie deren Darstellung nach Umrechnung der KER-Abhängigkeit zur  $R$ -Abhängigkeit (rechts), (c) Schema der Umrechnung des KER-abhängigen Messsignals in ein  $R$ -abhängiges Signal unter Ausnutzung des Reflexionsprinzips.

kann das Reflexionsprinzip genutzt werden [55] (siehe Abb. 6.5). Die Ionisation, d.h. das Herauslösen eines Elektrons aus dem Molekül, entspricht dem vertikalen Übergang des Moleküls aus dem gebundenen HeH<sup>+</sup>-Zustand auf das repulsive HeH<sup>2+</sup>-Potential. Die beiden Atome entfernen sich voneinander und die Fragmente gewinnen dabei abhängig von dem internuklearen Abstand  $R_i$  bei der Ionisation die Energie  $\text{KER} = U_{\text{HeH}^{2+}}(R_i) - U_{\text{HeH}^{2+}}(R \rightarrow \infty)$ . Die vergleichsweise kleine Vibrationsenergie des Moleküls wird dabei vernachlässigt.

Die aus den Born-Oppenheimer-Kurven ermittelten  $R$ -abhängigen Verteilungen zeigen (siehe Abb. 6.5), dass die Ionisation bei geringer Intensität ein Maximum bei  $R \approx 3,5$  a.u. hat, wobei die Verteilung Beiträge von internuklearen Abständen bis zu 6 a.u. aufweist. Bei den hohen Intensitäten erfolgt die Ionisation bei  $R \approx 2,2$  a.u. und das maximale  $R$  beträgt 4 a.u.

Um einen Vergleich mit Simulationsdaten zu vereinfachen, können die Messdaten in einer zweidimensionalen Verteilung als Funktion von KER- bzw.  $R$  und der Intensität zusammengefasst werden, wobei das Signal für jede Intensität normiert wurde (siehe Abb. 6.6 (a)). Gut sichtbar ist der Bereich um  $\approx 1 \cdot 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>, in dem sich das Maximum der KER-Verteilung von 6 eV zu 11 eV bzw. von  $R \approx 3,5$  a.u. zu  $R \approx 2,2$  a.u. verschiebt.

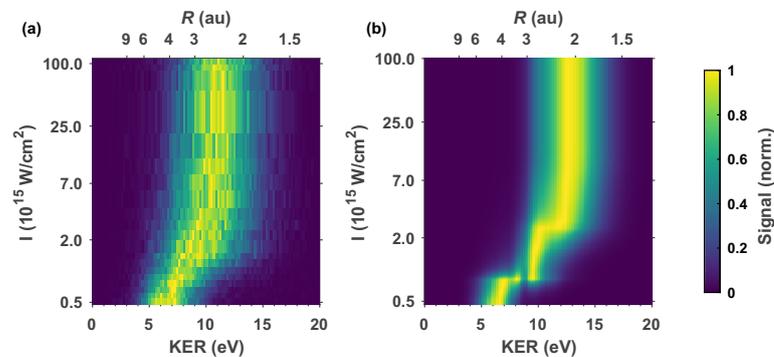


Abbildung 6.6: KER- und intensitätsabhängiges Messsignal für 800 nm für HeH<sup>+</sup> aus der Messung (a) und der TDSE-Simulation (b) (siehe Kap. 6.3.3).

### 6.3.2 Interpretation der Messergebnisse als Folge der Vibrationsanregung

Die Analyse des  $R$ -abhängigen Ionisationssignals gibt Aufschluss über den Ablauf der Fragmentation von HeH<sup>+</sup> (siehe Abb. 6.6 (a)). Vor der Interaktion befindet sich das Molekül im elektronischen Grundzustand und vorwiegend (ca. 55%) im Vibrationsgrundzustand  $v=0$  [196]. Die Gleichgewichtslage liegt bei  $R=1,45$  a.u., wobei das initiale nukleare Wellenpaket entlang  $R$  eine Ausdehnung besitzt, die in Abb. 6.1 (b) angedeutet ist.

Um die Ionisation bei den beobachteten internuklearen Abständen  $R > 2,2$  a.u. zu ermöglichen, muss vor der Ionisation des HeH<sup>+</sup> eine Streckung zu größerem  $R$  stattfinden. Diese Veränderung der Bindungslänge vor der Befreiung des Elektrons aus dem Molekül kann durch eine Anregung höherer Vibrationszustände erklärt werden [175]. Im Laserfeld ermöglicht das Dipolmoment von HeH<sup>+</sup> eine Kopplung der Kernwellenfunktion zu höheren gebundenen und ungebundenen Vibrationszuständen im elektronischen Grundzustand (siehe Kap. 6.1.3). Photonen mit einer Wellenlänge von 800 nm erlauben über einen Einphotonenübergang die nahezu resonante Anregung der Vibrationszustände, die ausgehend von  $v=0$  um die Photonenenergie von 1,55 eV verschoben sind, also  $v=7-11$  (siehe Abb. 6.1 (b) und Abb. 6.9 (b)). Diese Vibrationsniveaus besitzen eine größere Ausdehnung entlang  $R$  (siehe Abb. 6.9 (a)). Wird die Besetzung dieser Vibrationszustände erhöht, entspricht dies einer Streckung des HeH<sup>+</sup> zu größeren Abständen  $R$ .

Für niedrige Intensitäten kann die Anregung in der ansteigenden Flanke des Laserpulses stattfinden, sodass eine Streckung während des Laserpulses ermöglicht wird. Mit anwachsendem  $R$  reduziert sich das Ionisationspotential von 44 eV bei  $R=1,45$  a.u. auf bis zu 29 eV bei  $R=6$  a.u. (siehe Abb. 6.7 (a)). Während das Molekül sich streckt, steigt gleichzeitig die Feldstärke im zeitlichen Verlauf der Einhüllenden des Laserpulses weiter an. Beide Effekte, das kleiner werdende Ionisationspotential und die ansteigende Laserfeldstärke, erhöhen die Ionisationswahrscheinlichkeit und führen zur Ionisation bei niedrigen Laserintensitäten und großen Kernabständen. Die Ionisation von HeH<sup>+</sup> bei niedrigen Intensitäten kann also als Ergebnis eines Drei-Schritt-Prozesses – aus Vibrationsanregung, Streckung und Ionisation bei großem  $R$  – erklärt werden.

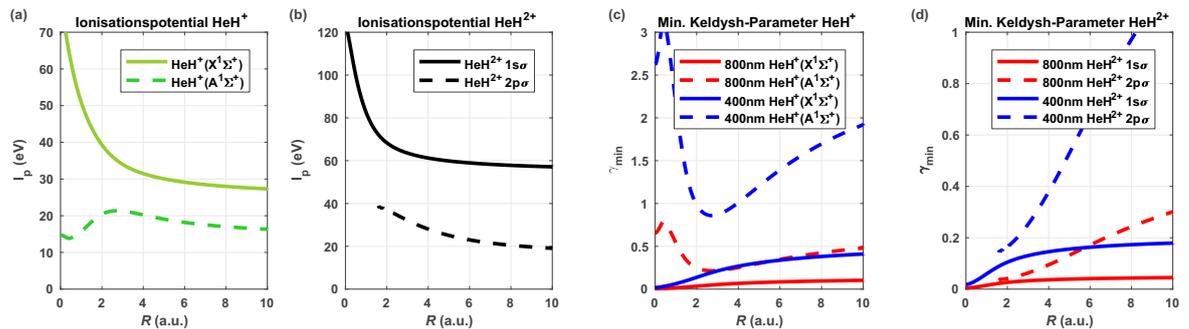


Abbildung 6.7: (a) Ionisationspotential des elektronischen Grundzustands und des angeregten Zustands von HeH<sup>+</sup> in Abhängigkeit des internuklearen Abstands. In (b) ist dies für HeH<sup>2+</sup> dargestellt. Eine Abschätzung für den minimalen Keldysh-Parameter für die Ionisation aus dem Grundzustand und dem angeregten Zustand mit den Laserwellenlängen 800 nm und 400 nm ist in (c) für HeH<sup>+</sup> und (d) für HeH<sup>2+</sup> gezeigt. Dabei wurde jeweils der Ladungszustand des Atoms entsprechend der approximativen Ladungsverteilung eingesetzt, aus dem das Elektron entfernt wird.

Für steigende Laserintensitäten wird die Ionisation auch nahe der Gleichgewichtslage des Moleküls wahrscheinlicher, sodass bei sehr hohen Intensitäten eine Streckung zu hohem  $R$  nicht notwendig ist. Außerdem ist in diesem Fall die Zeit vor der Ionisation bei Erreichen der hohen Feldstärken im Laserpuls zu kurz, um eine Streckung des Moleküls zu größerem  $R$  zu erlauben. Wenn die Fokusintensität über  $\approx 5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  steigt, geschieht die Ionisation vorwiegend ohne vorherige Streckung in der Nähe des klassischen Umkehrpunktes des gebundenen nuklearen Wellenpaketes (siehe Abb. 6.6 (a)). Die maximale KER von 17 eV entspricht einem  $R = 1,54 \text{ a.u.}$  und ist nahe an dem Gleichgewichtsabstand.

Die intensitätsabhängige Verschiebung des Signals in den gemessenen KER-Verteilungen (siehe Abb. 6.6 (a)) ist demnach die Folge des Übergangs von dem Drei-Schritt-Prozess aus Vibrationsanregung, Streckung und Ionisation bei großem  $R$  zu einer direkten Ionisation ohne vorherige Streckung.

Eine mögliche Abschätzung für die charakteristische Zeit des Streckvorgangs liefert die Vibrationsperiode der angeregten Zustände. Die feldfreie Vibration kann über  $T = 2\pi/(E_{v+1} - E_v)$  abgeschätzt werden. Die Ergebnisse sind in guter Übereinstimmung mit den entsprechenden Simulationsergebnissen von Stanke *et al.* [193]. Damit ergeben sich für die Zustände  $v = 6-8$  Vibrationsdauern von 34-100 fs, während der Vibrationsgrundzustand für HeH<sup>+</sup> eine Vibrationsperiode von 11,5 fs (siehe Tab. 6.1) aufweist. Die abgeschätzten Vibrationsperioden werden in Kap. 6.4.4 noch in Abhängigkeit der Isotope detaillierter diskutiert und sind in Abb. 6.12 (d) dargestellt.

Die Vibrationsperioden der angeregten Zustände sind mit 30-80 fs von ähnlicher Dauer wie die Länge der verwendeten Laserpulse. Dabei ist für eine Streckung zu größerem  $R$  vor der Ionisation keine volle Vibrationsperiode erforderlich. So benötigt ein vergleichbares klassisches Teilchen in dem Potential von HeH<sup>+</sup> etwa 5,5 fs, um von  $R = 2 \text{ a.u.}$  nach  $3 \text{ a.u.}$  zu gelangen und etwa 13,5 fs für die Strecke von  $2 \text{ a.u.}$  nach  $4 \text{ a.u.}$  Die verwendeten Laserpulse sind damit lang genug, um diese Streckbewegung zu ermöglichen.

### 6.3.3 Vibrationsanregung mit 800 nm- und 400 nm-Photonen

Um den beobachteten Prozess der Streckung des HeH<sup>+</sup>-Moleküls als Folge der Vibrationsanregung weiter aufzuklären, wurde die Messung mit Laserpulsen der Wellenlänge von 400 nm wiederholt. Bemerkenswert sollte zunächst, dass die Tunnelionisation für 800 nm und auch für 400 nm der dominierende Ionisationsmechanismus ist, wie eine Abschätzung des minimalen Keldysh-Parameters zeigt (siehe Abb. 6.7 (c-d)).

Für 400 nm (siehe Abb. 6.8 (a)) ist auf dem ersten Blick eine ähnliche Intensitätsabhängigkeit der gemessenen KER-Verteilungen zu beobachten. Ein genauer Vergleich zeigt jedoch, dass für kleine Intensitäten ( $I < 1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ) das Signal für  $\text{KER} < 8 \text{ eV}$  deutlich reduziert und das Maximum der Zählrate um 1 eV zu höheren KER verschoben ist (siehe Abb. 6.8 (c)). Für die hohen Intensitäten ist der Unterschied geringer und insbesondere die größten gemessenen KER stimmen für beide Wellenlängen überein (siehe Abb. 6.8 (d)).

Der Unterschied zwischen 400 nm und 800 nm kann in Übereinstimmung mit Kap. 6.3.2 über die Vibrationsanregung erklärt werden. Für 400 nm ist die Photonenenergie von 3,1 eV zu hoch, um eine resonante Anregung hoher Vibrationszustände zu ermöglichen. Die Photonenenergie von 400 nm führt aus dem Vibrationsgrundzustand direkt in ungebundene Zustände (siehe Abb. 6.9 (b-c)), die nur eine geringe Kopplung aufweisen. Für 800 nm ist die Streckung

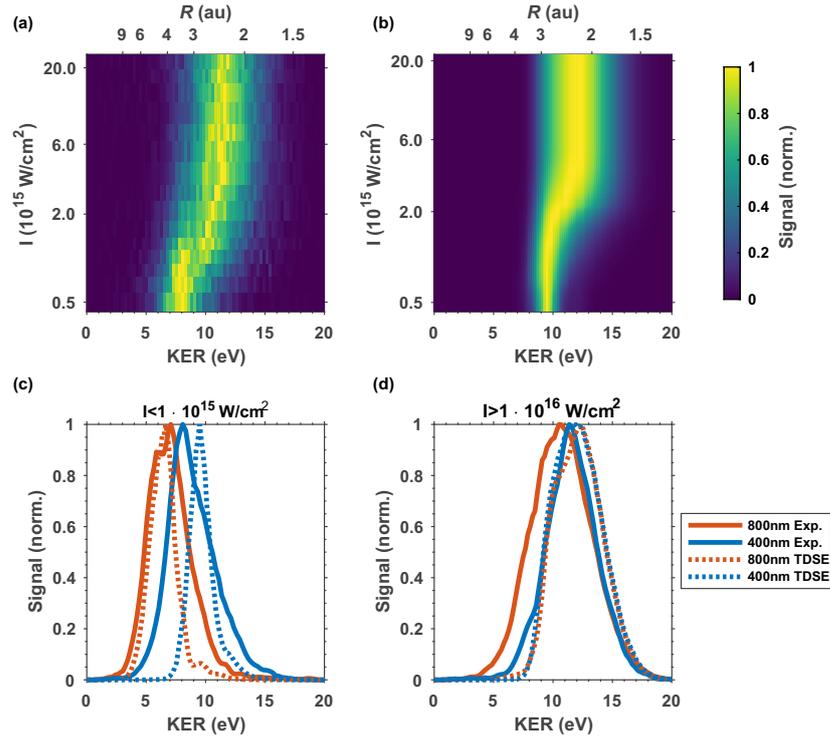


Abbildung 6.8: KER- und intensitätsabhängiges Messsignal für HeH<sup>+</sup> für 400 nm aus der Messung (a) und aus TDSE-Simulationen (b). In (c) sind die gemessenen und simulierten KER-Verteilungen für 400 nm und 800 nm für die  $I < 1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  gegenübergestellt. (d) zeigt dies für die hohen Intensitäten  $I > 1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$ . In der Mittelung der TDSE-Ergebnisse wurden die Intensitäten, in denen ausschließlich Doppelionisation zu erwarten ist, nicht berücksichtigt.

im Vergleich zu 800 nm stark reduziert und somit das Ionisationssignal von kleiner KER beziehungsweise großem  $R$  vermindert.

Diese Interpretation kann mit Simulationen<sup>3</sup> der zeitabhängigen Schrödingergleichung überprüft werden (siehe Anhang 8.2). Für beide untersuchten Wellenlängen sind die Ergebnisse der TDSE-Simulationen in Abb. 6.6 (b) und 6.8 (b) abgebildet, die entsprechend der experimentellen Bedingungen über die Intensitäts- und Vibrationszustandsverteilung gemittelt wurden. Die Ergebnisse sind vor allem für 800 nm in guter Übereinstimmung mit den Messdaten. Die TDSE-Simulationen erlauben es, zusätzliche Informationen über den beobachtenden Prozess zu erlangen, die in der Messung nicht zugänglich sind. So ist es naheliegend, die Population der Vibrationszustände zu analysieren, die an der Vibrationsanregung beteiligt sind.

Die Extraktion der Besetzung der einzelnen Vibrationszustände wird allerdings dadurch erschwert, dass während des Laserpulses die Population bei größerem  $R$  und damit der höheren Vibrationszustände schnell ionisiert und keine Besetzung in diesen Zuständen akkumuliert wird. Zumindest unterhalb der Sättigungsintensität ist die Population am Ende des Laserpulses gleichwohl aussagekräftig für die während des Pulses stattfindende Anregung. Sie ist das Ergebnis der Anregung in der abfallenden Flanke des Pulses, wo die Intensität bereits zu gering ist, um eine Ionisation zu ermöglichen.

Diese Ergebnisse in Abb. 6.9 (d-f) für die Anregung aus dem Grundzustand zeigen, dass für

<sup>3</sup>Die TDSE-Simulationen wurden von Florian Oppermann aus der Arbeitsgruppe von Prof. Lein in Hannover durchgeführt.

den Fall der 800 nm-Photonen die Zustände  $v = 5 - 10$  eine erhöhte Population für alle betrachteten Intensitäten aufweisen. Das Maximum der Anregung tritt in Übereinstimmung mit der Photonenenergie bei  $v = 6$  und  $v = 7$  auf. Die Amplitude der durch Vibrationsanregung populierte Zustände am Ende des Pulses zeigt keine große Intensitätsabhängigkeit, da eine stärkere Anregung bei höherer Intensität zu entsprechend stärkerer Ionisation führt.

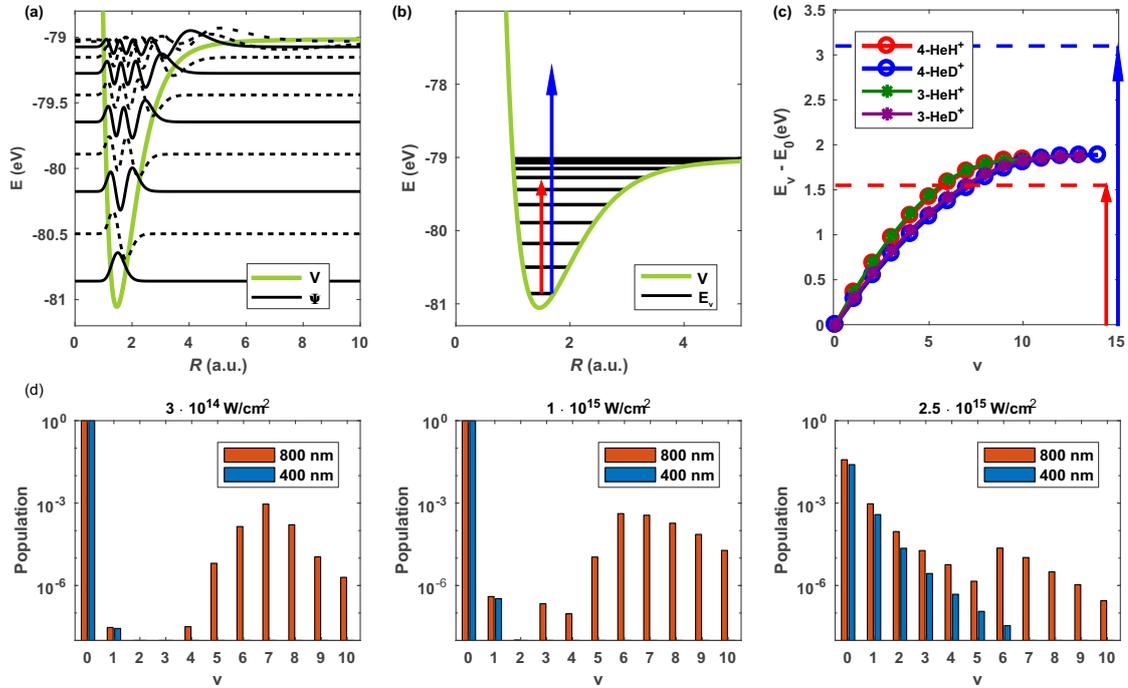


Abbildung 6.9: (a): Wellenfunktionen der Vibrationszustände in HeH<sup>+</sup> im Potential des elektronischen Grundzustandes  $X^1\Sigma^+$ , (b) Energie der Vibrationszustände  $E_v$  mit Energie eines 800 nm-Photons (rot) sowie eines 400 nm-Photons (blau) aus dem Vibrationsgrundzustand, (c) Energiedifferenz der Vibrationszustände gegenüber dem Vibrationsgrundzustand,  $E_v - E_0$ , für alle vier Isotope des HeH<sup>+</sup> sowie die Energie der anregenden 800 nm oder 400 nm-Photonen, (d) Population der Vibrationszustände für HeH<sup>+</sup> nach dem Laserpuls, die aus den TDSE-Simulationen für drei Intensitäten mit 800 nm und 400 nm extrahiert wurden.

Neben der starken Anregung für  $v = 5 - 10$  kann eine geringere Anregung der niedrigeren Zustände  $v = 1 - 3$  beobachtet werden. Dies zeigt jedoch eine deutliche Intensitätsabhängigkeit, wobei bei größeren Intensitäten eine höhere Population auftritt. Dieser Effekt kann durch Anregung aus dem Vibrationsgrundzustand infolge der Verformung des Potentials im Laserfeld oder der nicht gleichmäßigen Entleerung des Grundzustandswellenpaketes durch die bevorzugte Ionisation bei großem  $R$ , ähnlich dem bekannten Lochfraß-Mechanismus, erklärt werden [197; 198].

Im Vergleich zu den Ergebnissen für 800 nm zeigt die Population der Vibrationszustände für den Fall der 400 nm-Laserpulse keine Anregung der höheren Zustände  $v = 5 - 10$ . Wie beschrieben, lässt die Photonenenergie von 3,1 eV keine Vibrationsanregung zu (siehe Abb. 6.9 (b-c)). Die niedrigeren Vibrationszustände  $v = 1 - 3$  werden sowohl für 400 nm als auch für 800 nm in geringer Stärke angeregt. Es ist nur ein kleiner Unterschied in der Amplitude dieser Zustände erkennbar, die für 400 nm etwas geringer ist. Dies kann vermutlich über die kürzere Periodendauer der Laseroszillation im Fall der 400 nm-Pulse erklärt werden. Sie führt dazu,

dass das nukleare Wellenpaket den Verformungen des Potentials durch das Laserfeld nicht so schnell folgen kann. Diese Beobachtung der Anregung der benachbarten Vibrationszustände für 400 nm ist in Übereinstimmung mit den theoretischen Ergebnissen von Li *et al.* [199], die die Ionisation von HeH<sup>+</sup> bei 600 nm untersuchten. Für 600 nm führt die Absorption von einem Photon ebenfalls nur auf ungebundene Zustände.

Die Wellenlängenabhängigkeit für 800 nm und für 400 nm bestätigt somit, dass die Vibrationsanregung in HeH<sup>+</sup> entscheidend für die Beobachtung der Ionisation von großen Kernabständen ist (siehe Kap. 6.3.2).

### 6.3.4 Rolle der elektronischen Anregung und Enhanced Ionization

Aufgrund der Rolle des HeH<sup>+</sup> als Modellsystem für asymmetrische Moleküle gibt es eine Reihe von theoretischen Arbeiten, die die Ionisation von HeH<sup>+</sup> in starken Laserfeldern zum Gegenstand haben (siehe Kap. 6.1.2).

Im Hinblick auf die Ergebnisse, die im letzten Kapitel beschrieben wurden, muss an dieser Stelle detaillierter auf die Arbeiten von Dehghanian *et al.* eingegangen werden. Sie berichten vom Effekt einer verstärkten Ionisation bei speziellen Kernabständen des HeH<sup>+</sup>-Moleküls [181]. Als Ursache für die Erhöhung der Ionisationswahrscheinlichkeit geben Dehghanian *et al.* eine effiziente Anregung des ersten angeregten elektronischen Zustands aus dem elektronischen Grundzustand an, die durch die Angleichung der im Feld durch den Starkeffekt verschobenen Energieniveaus für bestimmte Kernabstände ermöglicht wird.

Basierend auf TDSE-Simulationen mit festen Kernabständen bei 800 nm und 400 nm sagen Dehghanian *et al.* für die  $R$ -abhängige Ionisationswahrscheinlichkeit ein breites Maximum zwischen  $R = 3 - 5$  a.u. voraus [181]. Das erhöhte Ionisationssignal würde sich in einem gemessenen KER-Spektrum bei  $KER = 5 - 9$  eV äußern. Dieser Mechanismus scheint im Widerspruch zum Ionisationsmechanismus zu stehen, der im vorangegangenen Kapitel für HeH<sup>+</sup> diskutiert wurde.

Entgegen des von Dehghanian *et al.* gewählten Ansatzes befinden sich in einer realistischen Situation die Atome des HeH<sup>+</sup>-Moleküls jedoch vor der Interaktion mit dem Laserpuls in einem Abstand, der ungefähr dem Gleichgewichtsabstand  $R = 1.45$  a.u. entspricht (siehe Abb. 6.1). Wie bereits erläutert, ist das Ionisationspotential für diese  $R$  sehr groß (siehe Kap. 6.3.2). Kommt es im Laserfeld zur Streckung des Moleküls zu höherem  $R$ , steigt die Ionisationswahrscheinlichkeit schon allein wegen der hohen  $R$ -Abhängigkeit des Ionisationspotentials sehr stark an. Für sehr hohe Laserintensitäten ist die Ionisation gesättigt, bevor das Molekül überhaupt die Region  $R > 3$  a.u. erreichen kann. Es ist also zweifelhaft, ob der von Dehghanian *et al.* beschriebene Effekt in einer Messung identifiziert werden kann.

Ergänzend anzumerken ist, dass der Effekt eines Maximums der Ionisationswahrscheinlichkeit bei  $R = 3 - 5$  a.u. auch von den in dieser Arbeit genutzten TDSE-Simulationen (siehe Anhang 8.2) reproduziert wird, wenn die Positionen der Kerne in der Rechnung festgehalten werden. Unsere TDSE-Simulationen, die die Kernbewegung zulassen und in guter Übereinstimmung mit den Messergebnissen sind, beinhalten also prinzipiell den von Dehghanian *et al.* diskutierten Effekt. Allerdings zeigen sie auch, dass für bewegliche Atomkerne und einem Molekül, das anfänglich nahe des Gleichgewichtsabstandes präpariert ist, die Effekte, die zur Streckung des Moleküls führen, für die Ionisationsdynamik entscheidend sind (siehe Kap. 6.3.3).

Darüber hinaus ist zu beachten, dass auch der angeregte elektronische Zustand zur Streckung des Moleküls beitragen kann. Wird das Molekül in den angeregten elektronischen Zustand überführt, befindet sich das nukleare Wellenpaket auf dem nicht bindenden Zustand  $A^1\Sigma^2$  (siehe Abb. 6.1). Dies führt zur Dissoziation, währenddessen es auch zur Ionisation aus dem angeregten Zustand kommen wird. Diese Dissoziation über den angeregten elektronischen Zustand führt zur Fragmentierung  $\text{HeH}^+ \rightarrow \text{He}^+ + \text{H}$ . Die Messung zeigte jedoch keine Hinweise auf diesen Fragmentierungskanal. Der Beitrag der Ionisation aus dem angeregten Zustand wurde von Wang *et al.* theoretisch analysiert [200]. Sie fanden, dass abhängig von der Wellenlänge die Ionisation aus dem angeregten elektronischen Zustand ungefähr 1% zum Gesamtsignal beitragen kann.

Aufgrund der hohen Anregungsenergie des Zustandes  $A^1\Sigma^2$  ist zu erwarten, dass seine Anregung umso effektiver geschieht, je geringer die Wellenlänge bzw. je höher die Photonenenergie ist. Dieser Effekt zeigt sich in TDSE-Simulationen (siehe Abb. 6.3) und den Arbeiten von Dehghanian *et al.* und Wang *et al.*. Aus den vorliegenden Messungen ist ersichtlich, dass das von größeren Kernabständen ( $R > 3$  a.u.) stammende Ionisationssignal für die 800 nm-Laserpulse höher ist als für die 400 nm-Laserpulse. Auch dies weist darauf hin, dass die elektronische Anregung nicht der dominierende Effekt für die Ionisation bei  $R > 3$  a.u. ist.

## 6.4 Isotope von HeH<sup>+</sup> – Vergleich mit HeD<sup>+</sup>

### 6.4.1 Isotopeneffekte in HeH<sup>+</sup>

Eine Besonderheit des HeH<sup>+</sup>-Moleküls besteht darin, dass sowohl Wasserstoff als auch Helium in zwei verschiedenen stabilen Isotopen vorkommen und somit vier verschiedene Isotopenzusammensetzungen des HeH<sup>+</sup> möglich sind (siehe Kap. 6.1.1). Darum kann für dieses Molekül die Wechselwirkung über einen weiten Bereich von Massenverhältnissen studiert werden. Isotopeneffekte in der Wechselwirkung von kleinen Molekülen mit starken Laserfeldern wurden bereits für H<sub>2</sub> und H<sub>2</sub><sup>+</sup> sowie H<sub>3</sub><sup>+</sup> nachgewiesen [201; 202; 203].

Tatsächlich ist die experimentelle Untersuchung anderer Isotope als <sup>4</sup>HeH<sup>+</sup> jedoch schwierig. Der wichtigste Grund dafür ist, dass das Helium-3 nicht ausreichend verfügbar ist<sup>4</sup>. Experimente mit Helium-3 konnten in dieser Arbeit daher nicht durchgeführt werden, obwohl das <sup>3</sup>HeD<sup>+</sup> aufgrund der ähnlichen Kernmasse für die praktische Durchführung des Experiments das am besten geeignete Molekül ist (siehe Kap. 6.2.2). Die Untersuchungen der verschiedenen Isotope waren somit auf die Nutzung von HeH<sup>+</sup> und HeD<sup>+</sup> begrenzt.

Bei dem Vergleich der Vibrationsenergien der Isotope (siehe Abb. 6.9), ihrer reduzierten Massen (siehe Tab. 6.1) sowie der permanenten Dipolmomente fällt auf, dass je zwei der Isotope sehr ähnliche Eigenschaften haben. Es ist daher zu erwarten, dass die Ergebnisse von Experimenten mit <sup>3</sup>HeH<sup>+</sup> den Beobachtungen für <sup>4</sup>HeH<sup>+</sup> ähneln würden. Gleiches gilt für <sup>3</sup>HeD<sup>+</sup> und <sup>4</sup>HeD<sup>+</sup>.

---

<sup>4</sup>Helium-3 ist auf dem Weltmarkt aufgrund der rückläufigen Tritiumproduktion durch die nukleare Abrüstung und seiner gestiegenen Verwendung für Neutronendetektoren in der Terrorbekämpfung extrem knapp und der hohe Preis (>3000 Euro/Liter) machen den Erwerb größerer Mengen unmöglich [204].

Molekül	$T_{vib}$ (fs)	Anzahl $v$	$\mu_r$ (u)	$p$ (a.u.)
<sup>4</sup> HeH <sup>+</sup>	11,5	11	$4/5 = 0,8$	$4/5R = 0,8R$
<sup>4</sup> HeD <sup>+</sup>	14,5	13	$8/6 \approx 1,33$	$4/6R \approx 0,67R$
<sup>3</sup> HeH <sup>+</sup>	11,1	10	$3/4 = 0,75$	$3/4R = 0,75R$
<sup>3</sup> HeD <sup>+</sup>	13,7	13	$6/5 = 1,2$	$3/5R = 0,6R$

Tabelle 6.1: Vergleich der Isotope bezüglich der fundamentalen Vibrationsfrequenz, der Anzahl der Vibrationszustände, der reduzierte Masse  $\mu_r$  und der permanenten Dipolmomente  $p$ .

### 6.4.2 Messung von HeD<sup>+</sup> über den Massendefekt

Die Messung mit HeD<sup>+</sup> ist experimentell noch deutlich schwieriger zu realisieren als die Experimente mit HeH<sup>+</sup>. Dies ist auf zwei Effekte zurückzuführen:

- Das zusammen mit HeD<sup>+</sup> produzierte D<sub>3</sub><sup>+</sup> kann nicht mit Hilfe des Wienfilters separiert werden.
- Die Fragmente der Einfachionisation von HeD<sup>+</sup> und D<sub>3</sub><sup>+</sup> haben die gleichen atomaren Massenzahlen.

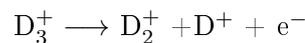
HeD<sup>+</sup> wird in der Ionenquelle aus einem Gemisch aus Helium und Deuterium über die Reaktion  $\text{He} + \text{D}_2^+ \rightarrow \text{HeD}^+ + \text{D}$  erzeugt. Im Plasma der Ionenquelle kann jedoch neben anderen Reaktionen die Kollision von HeD<sup>+</sup> mit D<sub>2</sub> zur Produktion von D<sub>3</sub><sup>+</sup> führen (siehe Kap. 6.2.1). Die effiziente aber unerwünschte Erzeugung von D<sub>3</sub><sup>+</sup> stellt ein großes Problem dar, da die beiden Molekülonen die exakt gleiche Massenzahl (6 Nukleonen) und die gleiche Ladung ( $q=1$ ) aufweisen. Eine Separation von HeD<sup>+</sup> und D<sub>3</sub><sup>+</sup> mit Hilfe des Wienfilters ist nicht möglich. Somit kann kein reiner <sup>4</sup>HeD<sup>+</sup>-Ionenstrahl realisiert werden. Vielmehr ist der Ionenstrahl in der Laserinteraktionszone eine Mischung von <sup>4</sup>HeD<sup>+</sup> und D<sub>3</sub><sup>+</sup>, sodass die laserinduzierten Fragmente von beiden Molekülonen auf den Detektor treffen.

Für D<sub>3</sub><sup>+</sup> existieren verschiedene Zerfallskanäle. Die Fragmentierung von D<sub>3</sub><sup>+</sup> in fs-Laserpulsen untersuchten schon McKenna *et al.* [205] und Saylor *et al.* [206]. Bei hohen Intensitäten dominieren die Drei-Teilchen-Fragmentierungen, die nach der Einfach- und der Doppelsonionisation auftreten. Von niedrigeren Intensitäten gibt es Beiträge der Einfachionisation und der Dissoziation, bei denen das Molekül in zwei verschiedene Fragmente zerfällt.

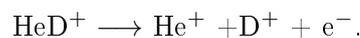
Diese Zerfallskanäle konnten auch in dem vorliegenden Experiment beobachtet werden. Der größte Anteil des Messsignals stammt von der Drei-Teilchen-Fragmentierungen von D<sub>3</sub><sup>+</sup>,



Dieser Kanal ist durch das Kriterium der Impulserhaltung der Zwei-Teilchen-Fragmentierung ( $\mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_2 = 0$ ) für die Fragmentierung von HeD<sup>+</sup> in der Auswertung leicht zu diskriminieren. Das große Problem stellt die Zwei-Teilchen-Fragmentierung



dar, weil die Ladungen und Massenzahlen der Fragmente dieser Reaktion identisch mit den Fragmenten der Einfachionisation von HeD<sup>+</sup> sind:



In beiden Reaktionen wird ein D<sup>+</sup> frei, wobei das jeweils andere Fragment (<sup>4</sup>He<sup>+</sup> bzw. D<sub>2</sub><sup>+</sup>) die gleiche Ladung und Massenzahl hat.

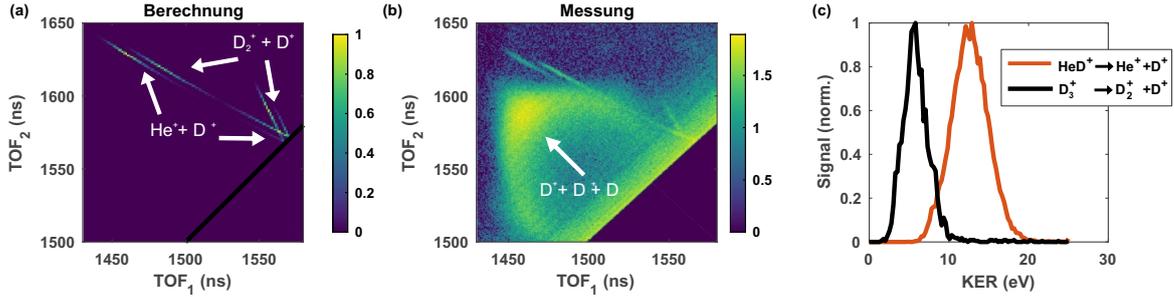


Abbildung 6.10: Das  $\text{HeD}^+$ -Experiment: (a) Berechnete Flugzeitverteilung (Time-Of-Flight) der Koinzidenzdetektion für das erste und zweite gemessene Teilchen. Die Fragmente für die Ionisation von  $\text{HeD}^+$  und  $\text{D}_3^+$  können nur aufgrund einer kleinen Flugzeitdifferenz der Fragmente unterschieden werden. In (b) ist die gleiche Verteilung für die gemessene Verteilung der Flugzeiten dargestellt. Die Fragmentierung von  $\text{HeD}^+$  und  $\text{D}_3^+$  erscheint in der Messung an denselben Positionen der Verteilung wie in der Berechnung. In der Messung ist zusätzlich ein starkes Signal der Drei-Teilchen-Fragmentierung  $\text{D}_3^+ \rightarrow \text{D}^+ + \text{D}^+ + \text{D}$  vorhanden, das die anderen Kanäle teilweise überlagert.

Die Massen des schweren Fragments unterscheiden sich nur durch den Massendefekt des Heliumkerns gegenüber zwei Deuteriumkernen. Das Molekül  $\text{D}_2^+$  hat eine Masse von 4,0275 u [207]. Gegenüber den 4,0021 u des Heliumions  $\text{He}^+$  ist dies ein Massenunterschied von nur 0,6%, sodass die Flugzeiten der Fragmente nahezu gleich sind. Die Separation der beiden Kanäle ist damit ohne weitere Hilfsmittel nicht möglich und die Ionisation von  $\text{HeD}^+$  und  $\text{D}_3^+$  kann nicht unterschieden werden.

Die Trennung der beiden Kanäle gelang schließlich unter Ausnutzung des statischen elektrischen longitudinalen Feldes in der Interaktionsregion (siehe Kap. 3.4). Wenn dieses Feld auf  $\approx 200 \text{ V/cm}$  erhöht wird, ergibt sich eine Differenz in den Flugzeiten von  $\text{He}^+$  und  $\text{D}_2^+$ , die für eine Selektion der Kanäle in der  $\text{TOF}_1$ - $\text{TOF}_2$ -Verteilung in der Auswertung ausreicht. Da die Fragmente in Koinzidenz detektiert werden, ist damit eine Separation möglich.

Eine Berechnung der Flugzeiten für ein Spektrometerpotential von 660 V resultiert in einer Zeitdifferenz der Fragmente von  $\approx 3,3 \text{ ns}$  (siehe Abb. 6.10 (a)). Die berechneten Flugzeiten berücksichtigen die KER der Molekülfragmentierung sowie die experimentellen Parameter wie den Abstand zwischen der Laserinteraktionszone und dem Detektor (913 mm), die Beschleunigungsspannung der Ionenquelle (10 kV), das Spektrometerpotential von 660 V und die Massen der Fragmente.

Aufgrund der nahezu parallelen Orientierung der Laserpolarisation in Richtung der Flugrichtung des Ionenstrahls nimmt die Flugzeitverteilung der Fragmente die Form der KER-Verteilung an. Als Konsequenz der Impulserhaltung bilden die Verteilungen der in Koinzidenz detektierten zusammengehörenden Fragmente Geraden in der  $\text{TOF}_1$ - $\text{TOF}_2$ -Verteilung, deren Winkel sich aus den Massenverhältnissen der Fragmente ergeben. Die für die Fragmentierung  $\text{D}_3^+ \rightarrow \text{D}_2^+ + \text{D}^+$  und  $\text{HeD}^+ \rightarrow \text{He}^+ + \text{D}^+$  berechneten Verteilungen haben damit den nahezu identischen Winkel, sind aber aufgrund der Massendifferenz um  $\approx 3,3 \text{ ns}$  verschoben. Dies stimmt sehr gut mit den gemessenen Flugzeitenverteilungen überein (vgl. Abb. 6.10 (a-b)).

### 6.4.3 Messergebnisse für HeD<sup>+</sup>

Durch die Kombination von hoher Auflösung, Massendefekt und Koinzidenzdetektion der Fragmente können die Ionisationen von HeD<sup>+</sup> und D<sub>3</sub><sup>+</sup> trotz der identischen Massenzahl separiert werden. Die gemessenen KER-abhängigen Verteilungen für beide Moleküle sind in Abb.6.10 (c) dargestellt. Die Messergebnisse für die Ionisation von D<sub>3</sub><sup>+</sup> stimmen gut mit den Beobachtungen von Saylor *et al.* [206] überein, die für den Kanal D<sub>3</sub><sup>+</sup> → D<sub>2</sub><sup>+</sup>+D<sup>+</sup> bei 10<sup>16</sup> W/cm<sup>2</sup> ein KER-Spektrum zwischen 4 eV und 8 eV beobachteten.

Aufgrund der experimentellen Schwierigkeiten für HeD<sup>+</sup> wurden für dieses Isotop vergleichsweise wenige Messungen erfolgreich durchgeführt, sodass nur eine Messung bei hoher Intensität mit 800 nm und eine Messung mit geringer Intensität bei 400 nm für eine Auswertung zur Verfügung standen.

Das KER-Spektrum für die Einfachionisation von HeD<sup>+</sup> bei der maximalen Intensität und einer Wellenlänge von 800 nm ist in Abb.6.11 (b) im Vergleich zu einer Messung mit HeH<sup>+</sup> bei gleichen experimentellen Bedingungen dargestellt. Das Maximum des KER-Spektrums für HeD<sup>+</sup> verschiebt sich im Vergleich zu HeH<sup>+</sup> um etwa 1,7 eV zu höheren Energien. In der Form der Verteilung sind keine Unterschiede erkennbar.

Dieser Effekt ist in Übereinstimmung mit den Ergebnissen der TDSE (unterbrochene Linie), wobei die Differenz der Zählratenmaxima der beiden Isotope in der Simulation kleiner ist als in der Messung.

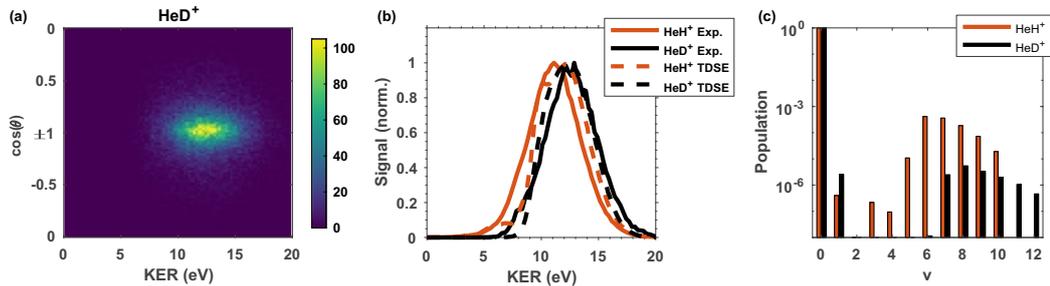


Abbildung 6.11: Einfachionisation von für HeD<sup>+</sup>: (a) gemessene KER-cos(θ) abhängige Verteilung für 800 nm bei der maximalen Fokusintensität von etwa 10<sup>17</sup> W/cm<sup>2</sup>, (b) Vergleich der KER-Spektren von HeH<sup>+</sup> und HeD<sup>+</sup> aus der Messung und der TDSE-Simulation, (c) Vergleich der aus der TDSE extrahierten Population der Vibrationszustände für beide Moleküle bei einer Laserintensität von 10<sup>15</sup> W/cm<sup>2</sup>.

### 6.4.4 Interpretation der HeD<sup>+</sup>-Ergebnisse

Aus der Verschiebung der Zählrate zu höheren KER für HeD<sup>+</sup> folgt, dass dieses Molekül im Vergleich zu HeH<sup>+</sup> bei geringeren Kernabständen ionisiert. Dies lässt sich sehr gut mit dem veränderten Massenverhältnis des Isotops erklären.

Die gleichen Ladungszahlen der Atome bewirken, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit bei festen Kernabständen für beide Moleküle nahezu unverändert ist [192]. Die beobachteten Unterschiede müssen daher aus der veränderten Kerndynamik infolge der unterschiedlichen Massenverhältnisse folgen.

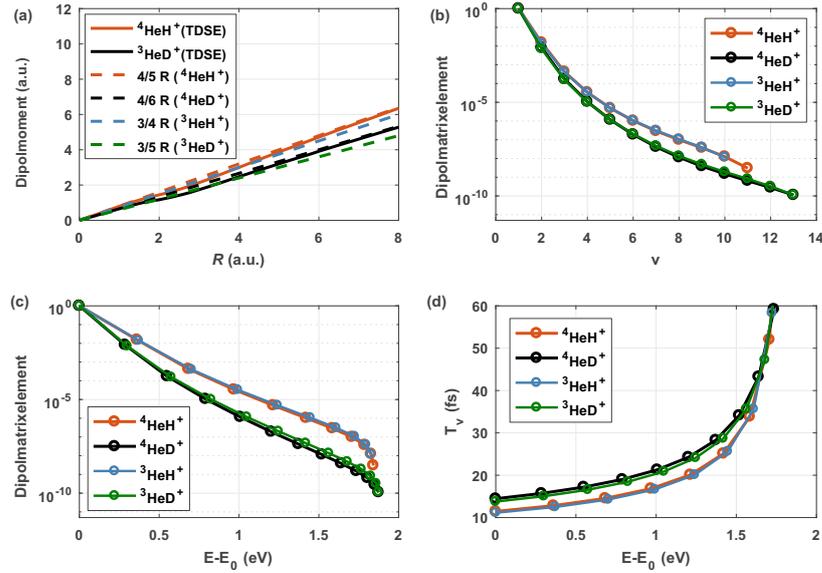


Abbildung 6.12: (a) Dipolmoment von HeH<sup>+</sup> und HeD<sup>+</sup> aus dem verwendeten TDSE-Modell sowie für alle Isotope die Approximationen von  $4/5R$  für  ${}^4\text{HeH}^+$ ,  $4/6R$  für  ${}^4\text{HeD}^+$ ,  $3/4R$  für  ${}^3\text{HeH}^+$  und  $3/5R$  für  ${}^3\text{HeD}^+$  (siehe Kap. 6.1.3), (b) Dipolmatrixelemente in Abhängigkeit des Vibrationszustands für die Vibrationsanregung für alle Isotope basierend auf der Approximation der Dipolmomente, (c) Dipolkopplungselemente aus (b) in Abhängigkeit der Energiedifferenz zum Vibrationsgrundzustand  $v=0$ , die der Photonenenergie für eine 1-Photonen-Vibrationsanregung entspricht. (d) Vibrationsperiode der Vibrationszustände aller Isotope ebenfalls in Abhängigkeit der Energiedifferenz zum Grundzustand  $v=0$ .

Die Massen der beiden Atome des linearen Moleküls beeinflussen über die Stärke der Vibrationsanregung, die Geschwindigkeit der Vibration und die Rotation den für HeH<sup>+</sup> beschriebenen Ionisationsmechanismus.

Die Veränderung der Molekülmasse von HeH<sup>+</sup> ( $\approx 5$  u) zu HeD<sup>+</sup> ( $\approx 6$  u) entspricht einer Massendifferenz von 20%. Die Größe, die für die Moleküldynamik entscheidend ist, ist jedoch die reduzierte Masse,  $\mu_r = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2}$ . Der Unterschied der reduzierten Massen zwischen HeH<sup>+</sup> ( $\mu_r = 4/5 = 0.8$ ) und HeD<sup>+</sup> ( $\mu_r = 8/6 \approx 1.33$ ) ist mit 67% erheblich größer. Die Kerndynamik sollte in HeD<sup>+</sup> folglich um 67% langsamer als in HeH<sup>+</sup> ablaufen.

Im Detail verändert die reduzierte Masse die Anzahl und Lage der Vibrationszustände (siehe Abb. 6.9 (c)). HeD<sup>+</sup> hat mehr Vibrationszustände und die Zustände mit gleichem Index liegen im Vergleich zu HeH<sup>+</sup> energetisch niedriger.

Die Kopplung zwischen den Vibrationsniveaus lässt sich über das Dipolmatrixelement  $\langle \Phi_i | d | \Phi_j \rangle$  berechnen und folgt aus der Ausdehnung der Wellenfunktionen und dem Wert des Dipolmoments [175]. Schon der Wert des Dipolmoments von HeD<sup>+</sup> mit  $4/6$  im Vergleich zu HeH<sup>+</sup> ( $4/5$ ) (siehe Tab. 6.1) lässt erwarten, dass die Vibrationszustände für HeD<sup>+</sup> weniger effizient angeregt werden können (siehe Abb. 6.12 (a)). Das Ergebnis der Kopplungsstärke ist in Abb. 6.12 (b) für alle vier Isotope abgebildet. Hierbei ist anzumerken, dass vor allem die Eigenschaften der Wellenfunktionen der Vibrationszustände, die im Wesentlichen aus den reduzierten Massen folgen, entscheidenden Einfluss auf den berechneten Wert für die Kopplung haben und das Ergebnis weniger vom Wert des Dipols abhängt.

Um die Anregung der höheren Vibrationszustände im Laserfeld zwischen den Molekülen ver-

gleiches zu können, muss die Kopplung des Vibrationsgrundzustands mit den Zuständen betrachtet werden, die mit der verwendeten Photonenenergie für das jeweilige Isotop angeregt werden können (siehe Abb. 6.12 (c)). Für HeD<sup>+</sup> sind dies bei 800 nm entsprechend der Photonenenergie von 1,55 eV die Zustände  $v = 7-12$ . Sie weisen eine um einen Faktor ca. 25 geringere Kopplung für HeD<sup>+</sup> im Vergleich zu der Situation in HeH<sup>+</sup> auf. Dieses Ergebnis sagt für HeD<sup>+</sup> einen deutlich geringeren Transfer aus dem Vibrationsgrundzustand in die höheren Zustände voraus und ist in Übereinstimmung mit denen aus den TDSE-Simulationen extrahierten Besetzungen der Vibrationszustände (siehe Abb. 6.11 (c)).

Bei dieser Darstellung der Besetzungsverteilung der Zustände ist zu beachten, dass neben der beschriebenen veränderten Kopplung auch die größere Anzahl von Vibrationszuständen in HeD<sup>+</sup> zu einer geringeren Höhe der Population einzelner Zustände beiträgt. Dieser Effekt ist aber vergleichsweise klein und nicht entscheidend für die geringere Besetzung der Zustände in HeD<sup>+</sup>.

Um den Unterschied der Kerndynamik für beide Moleküle herauszustellen, können zusätzlich die Vibrationsperioden der angeregten Vibrationszustände betrachtet werden. Ein Vergleich der Vibrationsniveaus, die mit 800 nm Photonen für HeH<sup>+</sup> bzw. HeD<sup>+</sup> am effektivsten angeregt werden können, ergibt Vibrationsperioden mit einer Dauer von 34 fs für HeH<sup>+</sup> ( $v = 6$ ) und 43 fs für HeD<sup>+</sup> ( $v = 8$ ) (siehe Abb. 6.12 (d)). Es ist also nicht nur schwieriger, in HeD<sup>+</sup> ein Wellenpaket anzuregen, vielmehr ist, wenig überraschend, auch die Vibrationschwingung deutlich langsamer.

#### 6.4.5 Vergleich der TDSE-Ergebnisse für HeD<sup>+</sup> und HeH<sup>+</sup>

Die schwächere Kopplung der Vibrationszustände und die langsamere Kernbewegung bewirken, dass für HeD<sup>+</sup> die Wahrscheinlichkeit einer Streckung des Moleküls zu großem  $R$  innerhalb der Pulsdauer reduziert ist. HeD<sup>+</sup> muss also im Mittel bei kleinerem  $R$  ionisiert werden. Das erfordert hohe Intensität und erklärt die höheren KER in der Messung.

Die TDSE-Simulationen (siehe Anhang 8.2) bestätigen diesen Effekt und geben gleichzeitig weitere Details. Die zeitabhängigen Verteilungen des gebundenen Teils der Kernwellenpakete entlang  $R$  für HeH<sup>+</sup> und HeD<sup>+</sup> bei gleicher Laserintensität zeigen, dass sich für HeH<sup>+</sup> die Wellenfunktion schneller entlang  $R$  ausdehnt (siehe Abb. 6.13).

Die mit Hilfe der TDSE simulierten KER-Verteilungen nach der Ionisation sind in Abb. 6.14 für die beiden Moleküle sowohl ohne als auch einschließlich der Intensitätsmittelung ge-

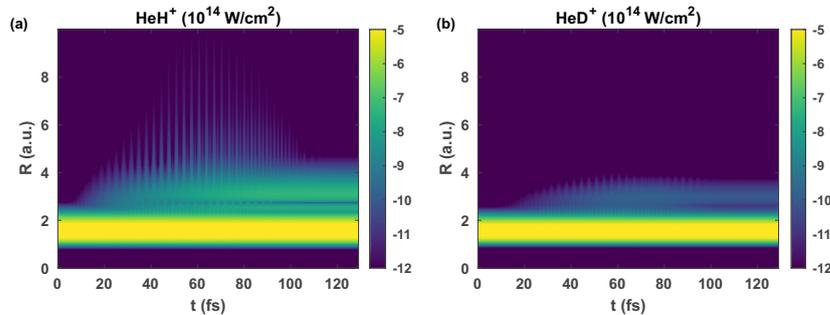


Abbildung 6.13: Zeitabhängige Verteilung der Wellenfunktion, projiziert auf den elektronischen Grundzustand aus der TDSE-Simulation: (a) HeH<sup>+</sup> bei  $10^{14} \text{ W/cm}^2$ , (b) HeD<sup>+</sup> bei  $10^{14} \text{ W/cm}^2$ .

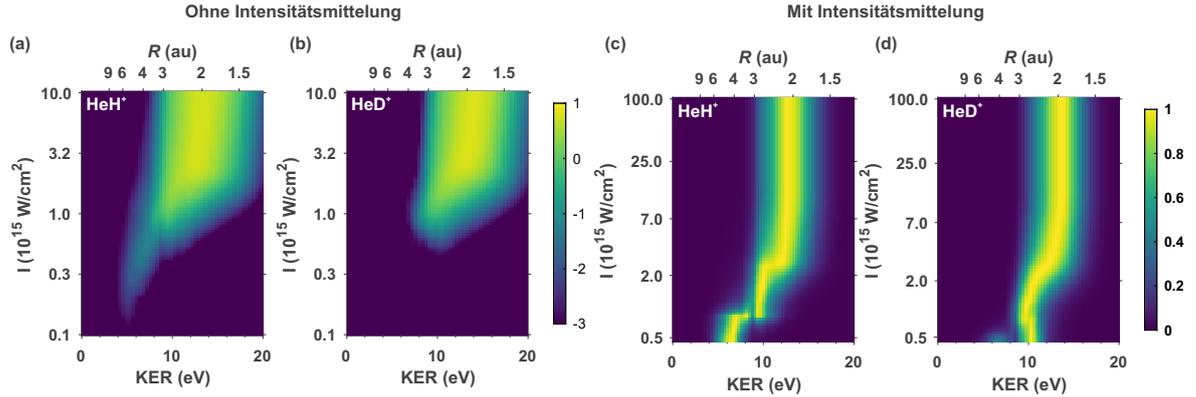


Abbildung 6.14: TDSE-Ergebnisse für die Einfachionisation für 800 nm für HeH<sup>+</sup> und HeD<sup>+</sup>: (a-b) KER- und intensitätsabhängige Verteilung nach Mittelung über die Vibrationszustände, aber ohne Intensitätsmittelung für HeH<sup>+</sup> und HeD<sup>+</sup> (mit logarithmischer Skala und ohne Normierung). (c-d) wie (a-b), aber mit Fokusmittelung und Normierung des Signals für jede Intensität (auf linearer Skala). Zu beachten sind die unterschiedlichen Achsen für die Intensität. (a-b) zeigt die Intensität direkt aus der Simulation, während die Werte in (c-d) die maximale Fokusintensität angeben.

genübertgestellt. Die TDSE-Ergebnisse ohne Intensitätsmittelung und Normierung verdeutlichen, dass im Vergleich zu HeH<sup>+</sup> für HeD<sup>+</sup> die Ionisation, die bei Intensitäten kleiner als  $5 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> von internuklearen Abständen von 3 - 6 a.u. stammt, deutlich reduziert ist (siehe Abb. 6.14 (a-b)). Für die Intensitätsmittelung entsprechend der experimentellen Parameter und Normierung des Signals für jede Intensität in (c-d) zeigen die Simulationsergebnisse, dass für HeD<sup>+</sup> nahezu kein Signal für KER < 9 eV auftritt.

Die Analyse der über  $R$  integrierten intensitätsabhängigen Ionisationswahrscheinlichkeit aus der Simulation veranschaulicht, dass HeD<sup>+</sup> im Vergleich zu HeH<sup>+</sup> bei gleicher Intensität ein geringeres Ionisationssignal erzeugt (siehe Abb. 6.15). Der Unterschied beträgt bei den niedrigen Intensitäten bis zu zwei Größenordnungen. Bei hohen Intensitäten, für die die direkte Ionisation ohne signifikante Streckung auftritt, gleichen sich die Ionisationswahrscheinlichkeiten an.

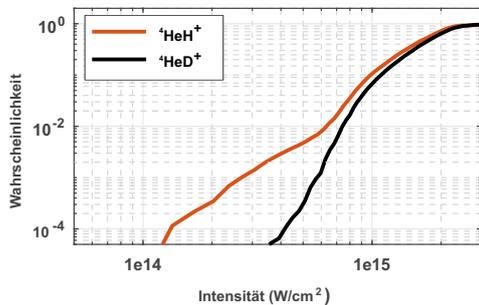


Abbildung 6.15: Vergleich der intensitätsabhängigen Ionisationswahrscheinlichkeiten von HeH<sup>+</sup> und HeD<sup>+</sup> aus der TDSE-Simulation für die Einfachionisation bei 800 nm. HeH<sup>+</sup> weist eine erhöhte Ionisationswahrscheinlichkeit bei geringen Intensitäten auf.

## 6.5 Untersuchung der Doppelionisation

### 6.5.1 KER-Verteilung der Doppelionisation

Für Intensitäten über  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> wurde, sowohl für 800 nm als auch für 400 nm, zusätzlich zur Einfachionisation auch die Doppelionisation von HeH<sup>+</sup> beobachtet.

Die gemessenen KER-abhängigen Spektren sind in Abb. 6.16 dargestellt. Die KER-Verteilung hat ihr Maximum bei 14 eV und reicht bis zu 27 eV. Auffällig ist die selbst im Vergleich zur Einfachionisation enorme Breite des KER-Spektrums.

Um Einblicke in den Doppelionisationsprozess zu erlangen, kann ähnlich wie bei der Einfachionisation wieder der Zusammenhang zwischen KER und dem Kernabstand  $R$  der Ionisation genutzt werden (siehe Kap. 6.3.1). Ausgehend von einem sequentiellen Doppelionisationsprozess sind die zwei Kernabstände  $R_1$  und  $R_2$  relevant, die den Abständen bei dem ersten und dem zweiten Ionisationsschritt entsprechen (siehe Abb. 6.16 (b)).

Die KER nach der Doppelionisation ergibt sich aus der Summe der Energien, die die Fragmente nach dem ersten Ionisationsschritt ( $\text{KER}_1 \approx \frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2}$ ) auf der Born-Oppenheimer-Potentialkurve von HeH<sup>2+</sup> und nach dem zweiten Ionisationsschritt auf HeH<sup>3+</sup> ( $\text{KER}_2 \approx \frac{2}{R_2}$ ) erlangen. Für die gesamte Energie der Fragmente folgt  $\text{KER}_{DI} = \text{KER}_1 + \text{KER}_2 \approx \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}$ . Da sowohl  $R_1$  als auch  $R_2$  unbekannt sind, kann von der gemessenen  $\text{KER}_{DI}$  nicht direkt auf die beteiligten Kernabstände geschlossen werden.

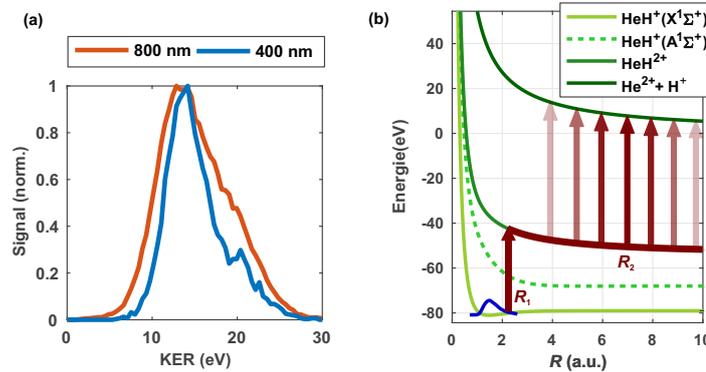


Abbildung 6.16: Doppelionisation für HeH<sup>+</sup>: (a) KER-abhängige Verteilung der Doppelionisation für 800 nm und 400 nm, (b) Potentiale für HeH<sup>+</sup> und HeH<sup>2+</sup> mit Weg der Doppelionisation (rote Pfeile). Der erste Ionisationsschritt findet bei  $R_1$  statt, der zweite Ionisationsschritt bei  $R_2$  ist über einen großen Bereich von Kernabständen verteilt.

Aus den Beobachtungen der Einfachionisation ist bekannt, dass der erste Ionisationsschritt bei  $\text{KER}_{SI} \approx 11$  eV gesättigt ist. Mit  $R_2 \approx (\text{KER}_{DI} - \text{KER}_{SI})^{-1}$  erhält man eine Abschätzung für den Kernabstand am zweiten Ionisationsschritt. Das Maximum des KER-Spektrums nach Doppelionisation entspricht einem  $R_2 \approx 9$  a.u. Für den größten KER-Wert von 27 eV ergibt sich unter Nutzung des größten Wertes der Einfachionisation von 16 eV ein  $R_2 \approx 2.4$  a.u.

Folglich findet der erste Ionisationsschritt in einem kleinen Bereich von Kernabständen statt, die zweite Ionisation aber ist über einen weiten Bereich von Kernabständen verteilt. Zwischen 800 nm und 400 nm können für die Doppelionisation nur geringe Unterschiede festgestellt werden. So ist die Zählrate für 400 nm kleiner und die KER-Verteilung hat eine etwas geringere Breite (siehe Abb. 6.16 (a)). Dies kann vor allem mit der niedrigeren maximalen Laserintensität

bei 400 nm erklärt werden. Wie bei der Einfachionisation ist das Signal bei geringeren KER für 400 nm im Vergleich zu 800 nm vermindert, während die Position des Maximums der Verteilung etwa gleich ist (siehe Kap. 6.3.3).

### 6.5.2 Semiklassische Simulation der Doppelionisation in HeH<sup>+</sup>

Die Interpretation der Doppelionisation im Rahmen der Quantenmechanik erfordert die Lösung der TDSE mit zwei Elektronen. Für die wenig realistische Situation fester Kernabstände analysierten Dehghanian *et al.* die Ergebnisse der TDSE für HeH<sup>+</sup> [181].

Die Berücksichtigung der Kerndynamik ist derzeit für die Doppelionisation bei hohen Laserintensitäten, wie sie bei der Fragmentierung des HeH<sup>+</sup> nötig sind, nicht möglich. Daher muss ein anderer Ansatz zur theoretischen Behandlung gewählt werden. Wie in Kap. 4 und Kap. 5.3 können semiklassische Simulationen Einblicke in den Ablauf der Doppelionisation gewähren. Eine erfolgreiche Variante solcher semiklassischen Modelle ist das sogenannte Dressed-Surface-Hopping (DSH) von Dr. Lun Yue aus der Arbeitsgruppe von Prof. Stefanie Gräfe (Institut für Physikalische Chemie Jena) [208]. Dabei werden die Kerne als klassische Teilchen behandelt, die sich im Laserfeld unter Berücksichtigung des permanenten Dipolmoments und der Polarisierbarkeit auf den instantanen Potentialflächen des HeH<sup>+</sup> und der höheren Ladungszustände bewegen. Diese auf Trajektorien basierende Simulation startet mit einer Anfangsverteilung von klassischen Teilchen, die aus den quantenmechanischen Zuständen von HeH<sup>+</sup> im gebundenen Potential gewonnen werden. Quasistatische Ionisationsraten, die vom Kernabstand  $R$  und der Orientierung der Moleküle zum Laserfeld abhängen, bestimmen die Wahrscheinlichkeit für Übergänge zwischen den Ladungszuständen [209; 210].

Der Ansatz hat, neben der Fähigkeit der Beschreibung der Doppelionisation, den Vorteil, dass er die Rotation des Moleküls und die Abhängigkeit der Ionisation von der Orientierung des Moleküls im Laserfeld behandelt. Dabei kann auch die Anfangsrotation der Moleküle aus der Ionenquelle mit einer Temperatur von ungefähr 3400 K berücksichtigt werden [191; 196].

Aufgrund der klassischen Behandlung werden allerdings einige quantenmechanische Effekte vernachlässigt. Dazu gehören die Anregung von Vibrationszuständen (siehe Kap. 6.3.2), Lochfraß [198] und die Berücksichtigung von angeregten elektronischen Zuständen (siehe Kap. 6.3.4).

### 6.5.3 Vergleich von Messung und Simulation

Während die Ergebnisse der DSH-Simulation für die Einfachionisation für geringe Intensitäten aufgrund der fehlenden Vibrationsanregung größere Abweichungen vom Experiment aufweisen, ist die Übereinstimmung der Ergebnisse der Einfach- als auch der Doppelionisation für die hohen Intensitäten, die für die Doppelionisation relevant sind, sehr gut (siehe Abb. 6.17(a)). Die Simulation reproduziert die Positionen der KER der Doppel- im Vergleich zur Einfachionisation, jedoch haben die simulierten Verteilungen eine geringere Ausdehnung als die gemessenen KER-Verteilungen. Für eine gute Übereinstimmung des Maximums der KER-Verteilung reicht in der Simulation die Wahl einer deutlich geringeren Intensität ( $I_{max} = 6 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ) aus, da durch den Effekt der Volumenmittelung auch das gemessene Doppelionisationssignal überwiegend von geringeren Intensitäten als der maximalen Fokusintensität stammt.

Die Analyse der Simulationsergebnisse gibt einen Einblick in den Ablauf der Ionisation. Die Kopplung zwischen der Kernbewegung und der Elektronendynamik wird bei der in Abb. 6.17 dargestellten Auswertung deutlich.

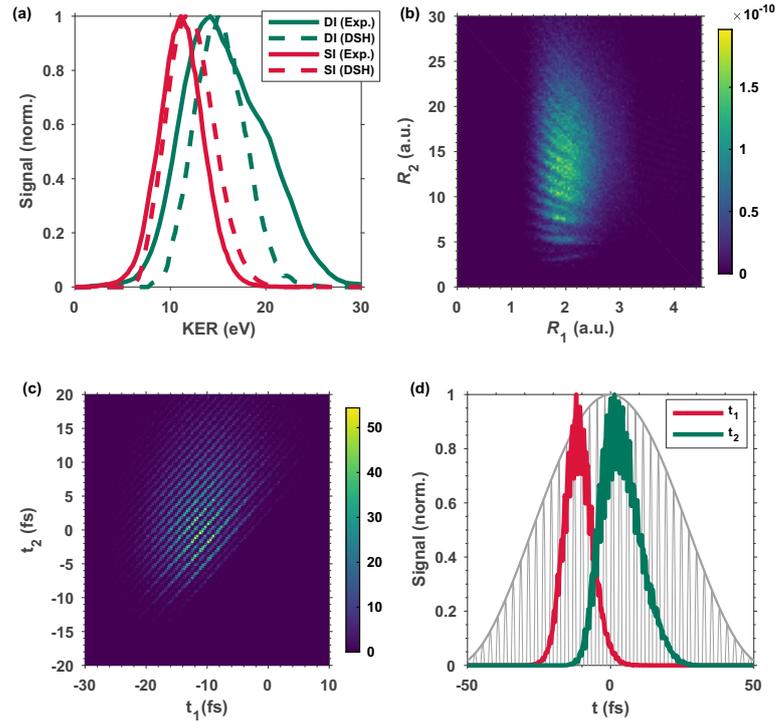


Abbildung 6.17: Doppelionisation von HeH<sup>+</sup>: (a) Vergleich der gemessenen KER-abhängigen Verteilungen nach Einfachionisation (rot) und Doppelionisation (grün) für  $I \approx 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> mit den entsprechenden Ergebnissen der DSH-Simulationen ( $I_{max} = 6 \cdot 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>) (gestrichelte Linien), (b) Gemeinsame Verteilung der Kernabstände der ersten und zweiten Ionisation der Doppelionisation aus der DSH-Simulation. (c-d) Simulierte Ionisationszeiten des ersten und zweiten Ionisationsschrittes. Die graue Kurve zeigt den Betrag des elektrischen Feldes.

Die Häufigkeit der Doppelionisation in Abhängigkeit der Kernabstände  $R_1$  und  $R_2$  zeigt in Übereinstimmung mit den vorangegangenen Abschätzungen, dass der erste Ionisationsschritt bei  $R_1 \approx 2$  a.u. konzentriert ist, während der zweite Ionisationsschritt über einen großen Bereich von Kernabständen zwischen 4 a.u. und 20 a.u. stattfindet (siehe Abb. 6.17 (b)).

Auffällig ist, dass die Maxima der Zählrate entlang diagonaler Linien angeordnet sind. Dies bedeutet, dass in Abhängigkeit der ersten Ionisation bei  $R_1$  die darauffolgende, zweite Ionisation bei bestimmten Kernabständen  $R_2$  eine erhöhte Wahrscheinlichkeit aufweist. Dies ist bemerkenswert, da die Ionisationszeitpunkte mehrere Laserzyklen voneinander entfernt liegen. Das zweite Elektron wird im Mittel 10 fs nach dem ersten Elektron durch das Laserfeld vom Molekül emittiert (siehe Abb. 6.17 (d)). Die Doppelionisationshäufigkeit in Abhängigkeit von  $t_1$  und  $t_2$  in Abb. 6.17 (c) zeigt, dass auch hier Diagonalen erhöhter Häufigkeit auftreten.

Zentral für die Beobachtungen für  $R_{1,2}$  und  $t_{1,2}$  ist die Tatsache, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit an den Extrema des elektrischen Feldes am höchsten ist. Wird das erste Elektron bei  $t_1$  und bei einem Kernabstand  $R_1$  ionisiert, führt das zu einer Erhöhung des Kernabstands  $R$  des ionisierten Moleküls entsprechend der Bewegung auf der Potentialfläche von HeH<sup>2+</sup>. Dabei sinkt das Ionisationspotential (siehe Abb. 6.7 (b)) für größere Kernabstände und ermöglicht den zweiten Ionisationsschritt zu einem späteren Zeitpunkt im selben Laserpuls. Die zweite Ionisation hat aber wie der erste Schritt die höchste Wahrscheinlichkeit an den Maxima des Laserfeldes. Der Abstand  $\Delta t = t_2 - t_1$  zwischen beiden Ionisationsschritten ist deshalb mit hoher Wahrscheinlichkeit ein ganzzahliges Vielfaches der halben Periodendauer. Damit

folgen die diagonalen Häufigkeitsmaxima in der  $t_1$ - $t_2$ -Verteilung.

Bei genauer Betrachtung fällt auf, dass benachbarte Diagonalen sowohl für das  $t_1 - t_2$  als auch für das  $R_1$ - $R_2$ -Histogramm alternierende Intensitäten haben. Dies ist auf die Asymmetrie des Moleküls zurückzuführen. Die Tunnelionisationswahrscheinlichkeit ist in Richtung des Wasserstoffkerns erhöht. Daher hängt die Ionisationswahrscheinlichkeit vom Vorzeichen des elektrischen Feldes ab. In den Fällen der maximalen Doppelionisationswahrscheinlichkeit ist der Abstand  $\Delta t = t_2 - t_1$  zwischen beiden Ionisationsschritten ein ganzzahliges Vielfaches der ganzen Periodendauer.

Diese Kopplung der Zeitpunkte  $t_1$  und  $t_2$  manifestiert sich in den Diagonalen im  $R_1$ - $R_2$ -Histogramm, da die festen Zeitdifferenzen  $\Delta t$  bestimmen, wie weit sich das Molekül ausgehend von  $R_1$  zu  $R_2$  am Zeitpunkt der zweiten Ionisation  $t_2$  gestreckt hat. Nach der Beschleunigung auf der Potentialkurve von  $\text{HeH}^{2+}$  findet der zweite Ionisationsschritt bevorzugt an den  $R_2$  statt, die wieder an einem Maximum des Feldes erreicht werden.

Die beschriebene Dynamik überträgt sich nicht auf die in der Messung zugänglichen KER-Werte nach der Doppelionisation. Es ist jedoch möglich, dass sich bei Verwendung von Laserpulsen mit längerer Wellenlänge oder mit Pump-Probe-Experimenten diese Effekte direkt in den gemessenen KER-Verteilungen nachweisen lassen.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die Übereinstimmung der DSH-Simulation mit den Messergebnissen bemerkenswert gut ist. Die sehr vereinfachte semiklassische Simulation erfasst die wesentlichen Aspekte der komplizierten Dynamik in der Doppelionisation von  $\text{HeH}^+$ . Die Breite der KER-Verteilung kann möglicherweise auch von Effekten beeinflusst werden, die in der Simulation nicht berücksichtigt sind. Neben der Rolle der Vibrationsanregung ist dies auch die erhöhte Ionisation über angeregte elektronische Zustände (vgl. Kap. 6.3.4) [181].

## Kapitel 7

# Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde die Interaktion des Heliumions, des Heliumatoms und des Heliumhydridions mit intensiven Laserfeldern experimentell untersucht und mit theoretischen Vorhersagen verglichen. Die Nutzung einer Ionenstrahlapparatur in Kombination mit ultrakurzen Laserpulsen ermöglichte es dabei, quantenmechanische Vorgänge zeitaufgelöst in fundamentalen Ein- und Zweielektronensystemen zu studieren.

Eine herausragende Eigenschaft quantenmechanischer Teilchen ist die Fähigkeit, durch klassisch verbotene Gebiete zu tunneln. Um ein besseres Verständnis dieses Prozesses zu erlangen und insbesondere Erkenntnisse über eine Tunnelzeit zu gewinnen, wurden in dieser Arbeit zum ersten Mal Experimente für die Ionisation des Ion des Heliumatoms in elliptisch polarisierten Laserfeldern durchgeführt. Das  $\text{He}^+$  ermöglicht es, den Tunnelvorgang an einem Einelektronensystem und näher am Idealfall des quasistatischen Tunnelregimes zu behandeln, welches durch einen geringen Keldysparameter charakterisiert wird.

Es wurde eine Auswertungsmethode angewendet, die den Elektronenemissionswinkel als Funktion des radialen Impulses analysiert und damit eine detaillierte Untersuchung in Abhängigkeit der Feldstärke ermöglicht. Es zeigt sich, dass die Elektronenemissionswinkel für  $\text{He}^+$  deutlich kleiner sind als für typischerweise verwendete Atome mit geringerem Ionisationspotential oder Ladungszustand. Für  $\text{He}^+$  spielen nichtadiabatische Effekte aufgrund des geringen Keldysh-Parameters eine verschwindende Rolle. Die Ergebnisse sind in guter Übereinstimmung mit Lösungen der TDSE sowie mit semiklassischen Simulationen, die keine Tunnelzeiten beinhalten.

Um in Zukunft die Tunnelionisationsmodelle mit noch genaueren Vergleichen von experimentellen und theoretischen Ergebnissen zu testen, können technische Verbesserungen, wie die Verwendung von Lasern mit höheren Repetitionsraten, dazu beitragen, für Experimente mit geringer Targetdichte, wie den Ionenstrahlversuchen, eine Erhöhung der Ereignisraten und damit der verfügbaren Statistik der gemessenen Impulsverteilungen zu ermöglichen.

Ein weiterer Gegenstand dieser Arbeit war die Untersuchung der Doppelionisation des neutralen Heliumatoms, bei dem zwei Elektronen aufeinanderfolgend durch Tunnelionisation in einem starken Laserpuls emittiert werden.

Um durch einen systematischen Vergleich von Einfach- und Doppelionisation mögliche Abweichungen vom Modell des sequentiellen Ionisationsmechanismus in elliptisch polarisierten Laserfeldern zu identifizieren, wurde für das Ionenstrahlexperiment eine Ladungsaustauschzelle entwickelt, sodass neben Ionen auch, durch Neutralisation erzeugte, Atome für Starkfeldexpe-

perimente zur Verfügung stehen. Erste Experimente mit intensiven Laserpulsen demonstrierten, dass der erzeugte neutrale Atomstrahl aus einer Mischung aus Atomen im Grundzustand und in Rydberg-Zuständen besteht.

In einer weiteren Untersuchung wurden experimentell gewonnene Ionenimpulsverteilungen der Doppelionisation von Helium durch nahezu zirkular polarisierte Few-Cycle-Laserpulse mit semiklassischen Monte-Carlo-Simulationen verglichen, die auf einem rein sequentiellen Ionisationsmodell basieren. Die Simulationen zeigten, dass beide Ionisationsschritte in der sequentiellen Doppelionisation durch die starke Abhängigkeit der Ionisationsrate von der Laserfeldstärke verbunden sind.

Im Gegensatz zu einer Reihe von anderen Experimenten [130; 131; 132], die die rein sequentielle Doppelionisation in Frage gestellt haben, wurde in der vorliegenden Arbeit eine bemerkenswert gute Übereinstimmung mit experimentellen Daten beobachtet. Die charakteristische 6-Peak-Struktur der gemessenen Ionenimpulsverteilung wird in einem sehr spezifischen und engen Parameterbereich reproduziert und zeigt, wie empfindlich die sequentielle Doppelionisation auf die Einhüllende und die genaue Subzyklenform des ionisierenden Laserfeldes reagiert.

Neben der Interaktion atomarer Systeme mit starken Laserfeldern wurde in dieser Arbeit auch die laserinduzierte Fragmentierung eines einfachen Moleküls untersucht. Bislang diente das symmetrische und unpolare Wasserstoff-Molekülion  $\text{H}_2^+$  stets als Modell und Ansatzpunkt für die Theoriebildung in der Starkfeldphysik. In dieser Arbeit erfolgte erstmals eine Untersuchung des asymmetrischen Heliumhydridmolekülions  $\text{HeH}^+$ , dem grundlegendsten polaren Molekül, in starken Laserfeldern.

Für symmetrische Moleküle wird die Starkfeldfragmentierung meist als Folge der Streckung des Moleküls durch laserinduzierte elektronische Anregung interpretiert. Im Kontrast dazu zeigen sowohl Experiment als auch Theorie für die Ionisation von  $\text{HeH}^+$ , dass hier die direkte Vibrationsanregung die entscheidende Rolle spielt. Die Dynamik dieses extrem asymmetrischen Moleküls steht im Gegensatz zu den bekannten symmetrischen Molekülen und gibt interessante Einblicke in das Verhalten asymmetrischer Systeme.

Das permanente Dipolmoment in  $\text{HeH}^+$  erlaubt die direkte Kopplung von Vibrationszuständen. Für 800 nm werden durch Einphotonenabsorption höhere Vibrationszustände besetzt, die zur Streckung des Moleküls vor der Ionisation führen. Aufgrund der höheren Photonenenergie ist dieser Mechanismus bei Verwendung von 400 nm-Laserpulsen nicht möglich und in den Messungen werden in diesem Fall höhere KER-Werte beobachtet.

Neben der Wellenlängenabhängigkeit der Ionisation von  $\text{HeH}^+$  wurde der Einfluss des Massenverhältnisses im Molekül durch die Untersuchung des Isotops  $\text{HeD}^+$  demonstriert, welche nur durch die Ausnutzung des Massendefektes der verschiedenen Fragmente von  $\text{HeD}^+$  und  $\text{D}_3^+$  möglich war. Die höhere Masse von  $\text{HeD}^+$  resultiert in einer geringeren Streckung des Moleküls und erklärt die Beobachtung entsprechend höherer KER nach der Ionisation.

Für  $\text{HeH}^+$  konnte auch die KER-Verteilung nach laserinduzierter Doppelionisation gemessen werden. Ein Vergleich mit semiklassischen Simulationen erlaubt es, den Ablauf der sequentiellen Doppelionisation zu rekonstruieren und die Zeitpunkte, zu denen jeder Ionisierungsschritt auftritt, sowie die Entwicklung der Bindungslänge vor der Entfernung der Elektronen zu bestimmen.

Eine Untersuchung der Dissoziation des  $\text{HeH}^+$ , die für die in dieser Arbeit genutzten Photonenenergien keine Rolle gespielt hat, kann in zukünftigen Experimenten die Verwendung von Laserpulsen mit längeren Wellenlängen ermöglichen [175; 176]. Weiterhin ist es aufgrund der

besonderen Ladungs- und Massenasymmetrie für das  $\text{HeH}^+$  vor allem interessant, die Fragmentationsprozesse durch die Subzyklenform der Laserpulse zu steuern. Diese Experimente sind mit Zweifarben-Laserpulsen oder CEP-aufgelösten Messungen realisierbar [12; 211].

Für die genauere Analyse der in der vorliegenden Arbeit diskutierten Rolle der laserinduzierten Vibrationsanregung in  $\text{HeH}^+$  wären Experimente vielversprechend, in denen das Molekül vor der Laserinteraktion durch Kühlung in einer Zajfman-Ionenfalle in den Vibrationsgrundzustand gebracht wird [212; 189].

# Kapitel 8

## Anhang

### 8.1 Separation der Schrödingergleichung in parabolischen Koordinaten

Das Wasserstoffatom und alle wasserstoffartigen Atome besitzt eine Symmetrie, die es ermöglicht die Schrödingergleichung für ein im Coulomb-Potential gebundenes Elektron unter Nutzung der parabolischen Koordinaten zu separieren [33; 31].

Die Schrödingergleichung für ein Ein-Elektron-System in einem homogenen elektrischen linear polarisierten Feld lautet

$$\left(\frac{1}{2}\Delta + I_p + \frac{Z}{r} - Ez\right)\psi = 0. \quad (8.1)$$

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

$$\begin{aligned} \xi &= r + z \\ \eta &= r - z \\ \phi &= \arctan \frac{y}{x} \end{aligned} \quad (8.2)$$

und umgekehrt

$$\begin{aligned} x &= \sqrt{\xi\eta} \cos \varphi \\ y &= \sqrt{\xi\eta} \sin \varphi \\ z &= \frac{1}{2}(\xi - \eta) \\ r &= \sqrt{x^2 + y^2 + z^2} = \frac{1}{2}(\xi + \eta) \end{aligned} \quad (8.3)$$

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

$$\Delta = \frac{4}{\xi + \eta} \left[ \frac{\partial}{\partial \xi} \left( \xi \frac{\partial}{\partial \xi} \right) + \frac{\partial}{\partial \eta} \left( \eta \frac{\partial}{\partial \eta} \right) \right] + \frac{1}{\eta\xi} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} \quad (8.4)$$

Die Schrödingergleichung lautet dann

$$\frac{4}{\xi + \eta} \left[ \frac{\partial}{\partial \xi} \left( \xi \frac{\partial \psi}{\partial \xi} \right) + \frac{\partial}{\partial \eta} \left( \eta \frac{\partial \psi}{\partial \eta} \right) \right] + \frac{1}{\eta\xi} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \phi^2} + 2 \left( I_p + \frac{2Z}{\eta + \xi} - \frac{E}{2}(\xi - \eta) \right) \psi = 0. \quad (8.5)$$

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

Damit führt die Separation zu den Gleichungen

$$\begin{aligned} \frac{d}{d\xi} \left( \xi \frac{df_1}{d\xi} \right) + \left( \frac{I_p}{2} \xi - \frac{m^2}{4\xi} - \frac{E}{4} \xi^2 \right) f_1 &= -\beta_1 f_1 \\ \frac{d}{d\eta} \left( \eta \frac{df_2}{d\eta} \right) + \left( \frac{I_p}{2} \eta - \frac{m^2}{4\eta} + \frac{E}{4} \eta^2 \right) f_2 &= -\beta_2 f_2 \\ \beta_1 + \beta_2 &= Z. \end{aligned} \quad (8.6)$$

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

$$E_B = -\frac{1}{2} \frac{Z^2}{n^2} + \frac{3}{2} E \frac{n}{Z} (n_1 - n_2) - \frac{E^2}{16} \frac{n^4}{Z^2} [17n^2 - 3(n_1 - n_2)^2 - 9m^2 + 19] + \mathcal{O}(E^3). \quad (8.7)$$

Die Energie ergibt sich aus der Summe der ungestörten Energiewerte und dem linearen Stark-effekt sowie dem quadratischen Starkeffekt. Da nur für das wasserstoffartige Atome die Zustände mit verschiedenen  $l$ -Werten (bei gleicher Hauptquantenzahl  $n$ ) entartet sind, erfahren die Niveaus des Wasserstoffatoms auch eine zur ersten Potenz des Feldes proportionale Aufspaltung.

Für das Wasserstoffatom folgt damit [213]

$$E_B = -\frac{1}{2} + \frac{3}{2} E - \frac{3}{2} E^2 + \mathcal{O}(E^3). \quad (8.8)$$

Darunter versteht man eine zur elektrischen Feldstärke  $E$  proportionale Aufspaltung der Terme beim Wasserstoff oder wasserstoffähnlichen Atomen.

Der quadratische Effekt ist negativ, d.h. er führt zur Absenkung der Energie. Die Starkeffekte sind zu  $n^2$  bzw.  $n^6$  proportional. Der Effekt wird daher umso stärker, je weiter das Elektron vom Kern entfernt ist, da dabei das Dipolmoment des Atoms größer wird. Gleichzeitig nimmt der Absolutbetrag der Energie bei steigender Hauptquantenzahl schnell ab. Zu beachten ist, dass die Störungsrechnung nur für Störungen gültig ist, die klein gegen die Energie der Niveaus sind.

Die Gleichungen 8.6 können über die Substitution  $f_1 = \chi_1/\sqrt{\xi}$  bzw.  $f_2 = \chi_2/\sqrt{\eta}$  in die Gleichungen

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \chi_1}{d\xi^2} + \left( \frac{I_p}{2} + \frac{\beta_1}{\xi} - \frac{m^2 - 1}{4\xi^2} - \frac{E}{4} \xi \right) \chi_1 &= 0 \\ \frac{d^2 \chi_2}{d\eta^2} + \left( \frac{I_p}{2} + \frac{\beta_2}{\xi} - \frac{m^2 - 1}{4\eta^2} + \frac{E}{4} \eta \right) \chi_2 &= 0 \end{aligned} \quad (8.9)$$

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

$$\begin{aligned} V_1(\xi, E) &= -\frac{\beta_1(E)}{2\xi} + \frac{m^2 - 1}{8\xi^2} + \frac{E\xi}{8} \\ V_2(\eta, E) &= -\frac{\beta_2(E)}{2\eta} + \frac{m^2 - 1}{8\eta^2} - \frac{E\eta}{8} \end{aligned} \quad (8.10)$$

ablesen. Die Gesamtenergie eines Teilchens wird dabei durch  $I_p/4$  repräsentiert. Der Verlauf der Potentiale ist in Abb. 8.1 dargestellt. In parabolischen Koordinaten findet die Ionisation in Richtung der  $\eta$ -Koordinate statt. Für hohe Feldstärken entsteht entlang  $\eta$  ein zweiter Bereich, in dem die Bewegung des Elektrons erlaubt ist. Das Elektron kann durch den dazwischen liegenden Potentialwall tunneln [33].

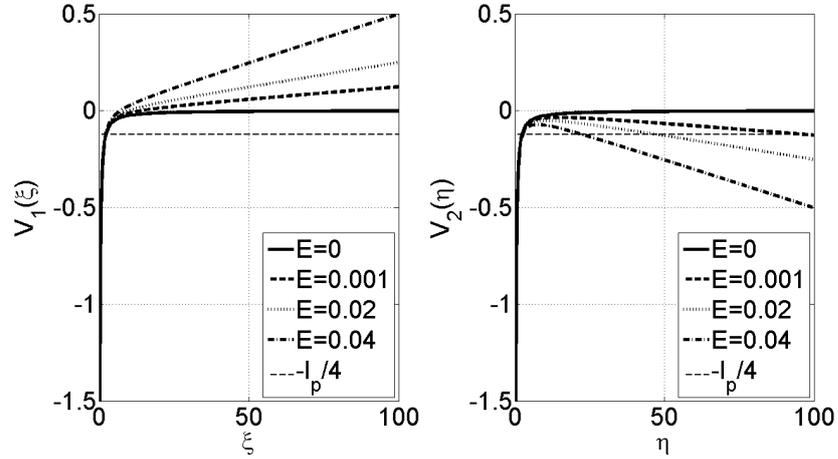


Abbildung 8.1: Verlauf der Potentiale  $V_1$  und  $V_2$  in elliptischen Koordinaten für  $m = 0$ .

Mit der Beschreibung des Tunnelprozesses mit dem Potential  $V_2$  kann die Position des Tunnelausganges in parabolischen Koordinaten über  $V_2(\eta_e, E) = -\frac{I_p}{4}$  bestimmt werden [32]. Dies liefert eine kubische Gleichung, die für  $\eta_e \ll \frac{2[(m^2-1)/8]}{\beta_2}$  folgende Lösung hat,

$$\eta_e = \frac{1}{E} \left( I_p + \sqrt{I_p^2 - 4\beta_2 E} \right), \quad (8.11)$$

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

$$z_e = -\frac{\eta_e}{2} = -\frac{1}{2E} \left( I_p + \sqrt{I_p^2 - 4\beta_2 E} \right) \quad (8.12)$$

befindet. Dabei folgt die Separationskonstante aus  $\beta_2 = Z - (1 - |m|)\sqrt{I_p/2}$  [214].

## 8.2 Das Modell für HeH<sup>+</sup> der TDSE-Simulation

In diesem Kapitel wird das Modell der TDSE-Simulationen von HeH<sup>+</sup> beschrieben, die für die Interpretation des HeH<sup>+</sup>-Experimentes genutzt wurde (siehe Kap. 6). Die Simulationen wurden von Florian Oppermann aus der Arbeitsgruppe von Prof. Lein in Hannover durchgeführt. Die zeitabhängige Schrödingergleichung (siehe Kap. 2.8) für HeH<sup>+</sup> in voller Dimensionalität zu lösen, ist mit derzeitiger Computertechnologie nicht durchführbar. Daher ist es neben klassischen oder semiklassischen Ansätzen ausschließlich möglich, die zeitabhängige Schrödingergleichung in eingeschränkter Dimensionalität zu behandeln.

Für das HeH<sup>+</sup> wurde ein eindimensionales Modell zur Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung in der Ein-Elektron-Näherung implementiert. Das Modell löst die gekoppelte eindimensionale Bewegung der Kerne und des Elektrons im Laserfeld. Die Laserpolarisation ist entlang der Molekülachse ausgerichtet.

Aufgrund der reduzierten Dimension wird die Rotation des Moleküls vernachlässigt. Die Ein-Elektron-Näherung ermöglicht nur die Beschreibung der Einfachionisation.

In diesem Fall lautet die zeitabhängige Schrödingergleichung

$$i\hbar \frac{\partial \psi(x, R, t)}{\partial t} = (H_0 + (\kappa x + \lambda R)eE(t)) \psi(x, R, t), \quad (8.13)$$

wobei  $H_0$  der feldfreie Hamiltonian mit  $\kappa = (M_N + Z_1 + Z_2)/(M_N + 1)$ ,  $\lambda = (Z_1 M_2 - Z_2 M_1)/M_N$  lautet:

$$H_0 = \frac{p^2}{2\mu_e} + \frac{P^2}{2\mu} - \frac{Z_1 e^2}{\sqrt{(x + \frac{M_2}{M_n} R)^2 + \alpha_1(R)}} + V_{\text{ion}}(R) - \frac{Z_2 e^2}{\sqrt{(x - \frac{M_1}{M_n} R)^2 + \alpha_2(R)}}. \quad (8.14)$$

Dabei sind  $x, p$  und  $R, P$  die Koordinaten und Impulse des aktiven Elektrons sowie des Kernabstandes.  $M_i$  and  $Z_i$  sind die Kernmassen und die effektiven Ladungen des Helium und Wasserstoffions mit  $M_N = M_1 + M_2$ .

Es wird angenommen, dass das inaktive Elektron am Heliumkern lokalisiert ist ( $Z_1 = Z_2 = 1$ ). Dabei ist  $V_{\text{ion}}(R)$  die potentielle Energie für das Entfernen des aktiven Elektrons und damit der Grundzustand der Born-Oppenheimer-Potentialenergiekurven von HeH<sup>2+</sup>.

Die Parameter des modifizierten Potentials  $\alpha_i(R)$  wurden so gewählt, dass sie für alle Kernabstände die zwei niedrigsten Born-Oppenheimer-Potentialkurven (siehe Abb. 6.1) reproduzieren. Das modifizierte Potential ist am Heliumkern tiefer als am Wasserstoffkern.

Als Folge der reduzierten Dimensionalität weicht das Dipolmoment des eindimensionalen Modells von den Ergebnissen einer dreidimensionalen Berechnung ab (siehe Abb. 6.2). Das Dipolelement des hier verwendeten eindimensionalen Modells stimmt vor allem für  $R < 2$  a.u. nicht ganz mit dem in voller Dimensionalität berechneten Dipolelement von Loreau *et al.* überein [194].

Als Initialzustand für die Zeitentwicklung wurden die Vibrationseigenzustände  $v = 0-5$  im elektronischen Grundzustand von  $H_0$  gewählt und auf einem Gitter unter Nutzung der Split-Operator-Methode propagiert [215] (siehe Abb. 8.2). Am Ende der Zeitpropagation wird aus dem vom Rand des Gitters absorbierten Teil der Wellenfunktion die KER-abhängige Wahrscheinlichkeitsverteilung nach der Einfachionisation bestimmt.

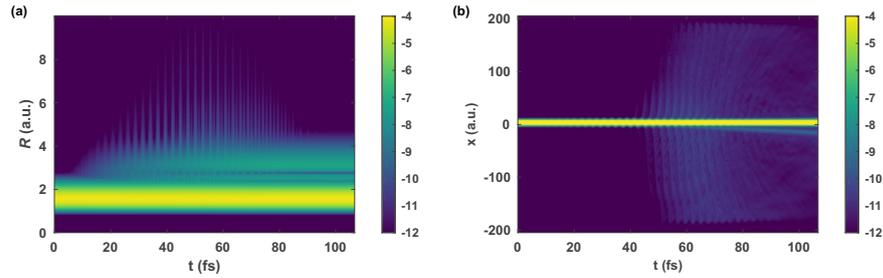


Abbildung 8.2: TDSE-Simulation für  $1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und 800 nm mit 30 fs Pulsdauer: (a) Zeitabhängige Verteilung der Wellenfunktion, projiziert auf den elektronischen Grundzustand, (b) Zeitabhängige Verteilung der Wellenfunktion, integriert für alle  $R$ .

Um den Vergleich der Simulationen mit den Messergebnissen zu gewährleisten, wurden die KER-abhängige Wahrscheinlichkeitsverteilung über die Anfangsvibrationszustandsverteilung gemittelt. Dazu wurden die Ergebnisse von Loreau *et al.* genutzt, die die Vibrationsverteilung für das Experiment mit  $\text{HeH}^+$  von Pedersen *et al.* analysiert haben [187; 196]. Dieses Experiment basierte ebenfalls auf einer Duoplasmatronquelle zur Erzeugung des  $\text{HeH}^+$ -Ionenstrahls. Loreau *et al.* stellten fest, dass die Anfangsvibrationszustandsverteilung nahezu unabhängig von den Geometrieparametern der Duoplasmatronquelle ist, sich aber stark für verschiedene Arten von Ionenquellen unterscheidet.

Weiterhin wurden die simulierten KER-Verteilungen entsprechend der experimentellen Bedingungen über die Intensitätsverteilung im Laserfokus gemittelt [75]. Dabei wurde die TDSE-Simulation mit Intensitäten von bis zu  $10^{16} \text{ W/cm}^2$  durchgeführt. Für höhere Intensitäten ist zu beachten, dass die Beiträge der Doppelionisation dominieren.

### 8.3 Erzeugung intensiver ultrakurzer Laserpulse

Seit dem Beginn der Entwicklung der Titan:Saphir-Laser 1986 [216] setzte sich diese Technologie schnell als bevorzugte Methode für die Erzeugung von Femtosekundenlaserpulsen durch. Dies begründet sich in den zahlreichen Vorteilen von Ti:Saphir als Lasermedium. Dazu zählt vor allem deren hohe Verstärkungsbandbreite [217]. Diese Technologie trug maßgeblich zu den Errungenschaften in der Starkfeldlaserphysik und Attosekundenphysik, sowie den angrenzenden Feldern wie der Femtosekundenspektroskopie, bei.

Grundlegende Konzepte zur Erzeugung von intensiven Femtosekundenlaserpulsen sind die Modensynchronisation mittels Kerr-Linse (engl. Kerr-Linsen Modelocking) [217] und die Verstärkung gechirpter Pulse (engl. Chirped Pulse Amplification, CPA) [218].

#### 8.3.1 Lasersystem

Dieses Kapitel bietet einen Überblick über das Lasersystem in dem Labor des Lehrstuhls für Nichtlineare Optik der Friedrich-Schiller-Universität Jena, welches für die Experimente in dieser Arbeit genutzt wurde.

Eine Abbildung über das Schema des Lasersystems und der wichtigsten Parameter ist in Abb. 8.3 dargestellt. Die Erzeugung der Laserpulse beginnt mit dem Lasersystem Femtopower Compact Pro HP/HR CEP. In diesem System werden vor dem Verstärkungsprozess die Laserpulse in einem auf Modensynchronisation mittels Kerr-Linse basierenden Ti:Saphir-Laseroszillator erzeugt. Dieser Oszillator verfügt auch über die Möglichkeit, die Carrier-Envelope-Phase (CEP, dt. Träger-Einhüllenden-Phase) der Laserpulse zu stabilisieren. Die Pulsenergie beträgt an dieser Stelle einige nJ bei einer Pulsdauer von sub-10 fs und einer Repetitionsrate von 77,9 MHz. Vor der Verstärkung werden diese Pulse mit einem Glasblock als Strecker auf einige ps gestreckt. Die Verstärkung geschieht in einem auf ca. 182 K gekühlten 9-Pass-Verstärker, der mit 532 nm-Pulsen bei einer Energie von ca. 9 mJ gepumpt wird.

Nach den ersten vier Pässen wird die Repetitionsrate mit Hilfe einer Pockelszelle auf 4 kHz reduziert. Ein akustooptischer Modulator (Fastlite Dazzler) ermöglicht die Kontrolle der spektralen Amplitude und Phase der Laserpulse. Nach weiterer Verstärkung in den Pässen fünf bis neun beträgt die Pulsenergie ca. 1 mJ und ein Gitterkompressor komprimiert die Laserpulse auf ca. 25 fs bei einer Zentralwellenlänge von ca. 780 nm. Von den emittierten Laserpulsen werden 90% der Energie in eine 1 m lange, mit Edelgas gefüllte Hohlleiter gesendet, um durch nichtlineare spektrale Verbreiterung Few-Cycle-Laserpulse mit Pulsdauern von ca. 5 fs zu erzeugen (siehe Kap. 8.3.3). Die Dispersion wird durch gechirpte Spiegel korrigiert, wobei die Optimierung der spektralen Phase der Few-Cycle-Laserpulse mit Hilfe des akustooptischen Modulators im Verstärkersystem möglich ist.

Vor der Hohlleiterkompression werden 10% der Pulsleistung über einen Strahlteiler ausgekoppelt und als Seed für ein zweites Verstärkersystem zur Erzeugung höherer Pulsenergien verwendet. Dieses Verstärkersystem stammt von der Firma Thales. Eine weitere Pockelszelle reduziert die Repetitionsrate auf 1 kHz. Die Seed-Pulse werden mit einem Öffner-Strecker auf ca. 300 ps gestreckt [219]. Durch die zahlreichen Reflexionen auf den Gittern und Spiegeln hat der Strecker nur eine Transmissionseffizienz von ca. 30%. Daher verstärkt ein wassergekühlten Vorverstärker (Booster) die nJ-Pulse, bevor sie in den Hauptverstärker gesendet werden, auf ca. 1 mJ. Der Vorverstärker wurde von der Firma Thales als 2-Pass-Verstärker konzipiert, der

mit ca. 11 mJ bei 532 nm gepumpt wird. Erst danach erfolgt die Verstärkung in dem Hauptverstärker, der von ca. 45 mJ gepumpt und im Betrieb mit kryogener Kühlung auf ca. 61 K gekühlt wird. Die Pulse mit einer Energie von 13,5 mJ werden abschließend in einem Kompressor mit Goldgittern mit einer Transmissionseffizienz von 82% komprimiert, sodass Pulse mit ca. 11 mJ bei einer Pulsdauer von ca. 33 fs für Experimente zur Verfügung stehen.

Um eine bessere Kontrolle der spektralen Phase und Amplitude zu ermöglichen, wurde während dieser Promotionsarbeit ein akustooptischer Modulator (Dazzler HR 800 [220] der Firma Fastlite) in den Thales-Laser integriert. Zum Ausgleich der dabei entstehenden Verluste der Pulsenergie erfolgte der Umbau des Vorverstärkers von einem 2-Pass- in einen 4-Pass-Verstärker. Die Inbetriebnahme des akustooptischen Modulators bietet bei gleicher Pulsenergie des Gesamtlasersystems durch eine optimierte spektrale Phase einen dramatisch besseren Pulscontrast und die Möglichkeit, das Spektrum der Laserpulse zu manipulieren (siehe Kap. 8.3.2).

Für den Großteil der Experimente, die in dieser Arbeit vorgestellt werden, wurden die 800 nm-Pulse des Thales-Lasersystems verwendet. Die Laserpulse des Thales-Lasersystems können wahlweise auch in einen optisch parametrischen Verstärker Topas der Firma Light Conversion gesendet werden. Dies ermöglicht über verschiedene Stufen der nichtkolliniaren Differenzfrequenzzeugung die Verwendung von Laserpulsen mit längeren Wellenlänge im Bereich zwischen 1,1  $\mu\text{m}$  und 10  $\mu\text{m}$  [221].

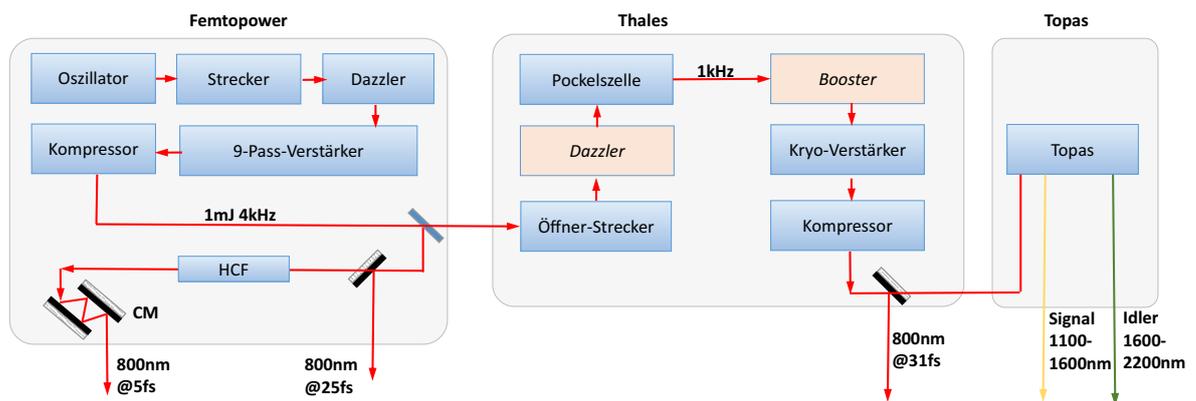


Abbildung 8.3: Schematischer Aufbau des Lasersystems im Labor Nichtlineare Optik. Der akustooptische Modulator (Dazzler) des Thales-Lasersystems wurde zur Kontrolle der spektralen Amplitude und Phase der Laserpulse zusätzlich installiert. Um die Verluste in der Pulsenergie nach dem Dazzler auszugleichen erfolgte der Umbau des Vorverstärkers (Booster) (siehe Kap. 8.3.2).

### 8.3.2 Formung von Laserpulsen mit einem akustooptischen Modulator

Dieses Kapitel beschreibt die Motivation für die Formung der Laserpulse mit einem akustooptischen Modulator sowie die Umsetzung für das vorhandene Lasersystem.

Methoden für Formung von Laserpulsen sind weit verbreitet und finden zahlreiche Anwendungen. Sie sind ein hilfreicher Bestandteil von Lasersystem zur Erzeugung und Optimierung von ultrakurzen Laserpulsen und ermöglichen interessante Experimente, z.B. in der kohärenten Kontrolle von quantenmechanischen Prozessen. Von besonderem Interesse ist die Möglichkeit,

einen Pulsformer direkt zur Beeinflussung der Ergebnissen eines Experiments zu nutzen, z.B. zur Begünstigung eines bestimmten Reaktionspfades oder Maximierung eines Messsignals.

Diese Möglichkeit bietet neben andern Methoden ein akustooptischer Modulator, wie es von Tornois 1996 vorgeschlagen wurde [222]. Dieser Modulator beruht auf dem akustooptischen Effekt, der die Kopplung zwischen zwei optischen Moden in einem Kristall ermöglicht. In der Interaktion wird ein breitbandiger akustischer Impuls an einen transparenten, doppelbrechenden, einachsigen Kristall angelegt [223]. Die Polarisation des einfallende Lichtpulses wird entlang einer Achse gewählt, sodass durch die Interaktion Licht in den orthogonalen Polarisationszustand überführt wird. Jede Frequenz des einfallenden optischen Pulses propagiert im Kristall bis sie auf eine phasengepasste räumliche Frequenz des akustischen Gitters trifft. Liegt Phasen Anpassung vor, dann wird ein Teil der Energie dieser optischen Frequenz gebeugt [224]. Die Überlagerung aller gebeugten Frequenzen ergibt den Laserpuls, der den akustooptischen Modulator verlässt. Der gebeugte Puls wird von dem räumlichen Intensitätsprofil der akustischen Welle kontrolliert. Neben dem gebeugten Strahl, der sowohl in Amplitude und Phase verändert ist, verlässt der nichtgebeugte Anteil des eingehenden Laserpuls, für den es keine Phasensteuerung gibt, den Kristall.

Somit ist eine vollständige Kontrolle der Phase und Amplitude des gebeugten Impulses durch Steuerung der akustischen Phase und Leistungsspektren möglich. Der akustooptischer Modulator kann in einem Lasersystem die Phase der emittierten Pulse, die von einer fehlerhaften Anpassung der Beiträge zur Dispersion eines CPA Lasersystems beeinflusst werden, korrigieren sowie Verluste der Bandbreite, die aus dem Verstärkungsprozess folgen, vorkompensieren. Ein akustooptischer Modulator hat dabei den Vorteil, dass er über eine kompakte Größe verfügt, leicht in bestehendes Lasersystem zu integrieren ist und große Flexibilität durch die Programmierung bietet. Eine andere häufig verwendete Methode zur Kontrolle der spektralen Amplitude und Phase ist ein räumlicher Modulator für Licht (engl. Spatial Light Modulator (SLM)). Entscheidender Unterschied eines SLM im Gegensatz zu dem akustooptischen Modulator ist, dass der SLM notwendigerweise in der Fourierebene positioniert werden muss. Für das in Kap. 8.3.1 beschriebene Lasersystem verfügt in der ursprünglichen Version nur das erste Verstärkersystem über einen akustooptischen Modulator, der der Optimierung der Few-Cycle-Pulse nach der Hohlleiter dient. Dazzler ist ein kommerziell von der Firma Fastlite angebotener akustooptischer Modulator. Er ermöglicht es die spektrale Phase und Amplitude von ultrakurzen Laserpulsen zu kontrollieren.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde an der Erzeugung von Few-Cycle-Pulse mit höherer Pulsenergie unter Nutzung der Laserpulse des 1-kHz-Lasersystems (Thales, siehe Abb. 8.3 gearbeitet. Dazu wurde in das vorhandene Lasersystem ein zweiter Dazzler eingebaut, mit dem Ziel, die Kontrolle der spektralen Intensität und Phase der Laserpulse des Thales-Lasersystems unabhängig vom Femtopowersystem zu ermöglichen. Dies ist eine Voraussetzung für die erfolgreiche Hohlleiterkompression der Laserpulse des Thales-Lasersystems.

Der Dazzler HR 800 [220] der Firma Fastlite wurde in das vorhandene Lasersystem integriert und getestet. Die Installation erfolgte zwischen dem Öffner-Strecker und dem Booster-Vorverstärker. Die Synchronisation von akustischer und optischen Puls im Dazzler wurde durch Anpassung des Triggersignals vorgenommen. Da der Dazzler aufgrund seines Funktionsweise die Polarisation der Laserpulse um  $90^\circ$  dreht, kann durch den Einbau einer Halbwellenplatte vor dem Dazzler die ursprüngliche Polarisationsrichtung im Lasersystem beibehalten werden.

Die limitierte Beugungseffizienz von ca. 40% des Dazzlers führt zu einer geringeren Pulsenergie, die als Seed für den Verstärker zur Verfügung steht. Diese Verluste an Seedenergie müssen kompensiert werden, um die ursprüngliche Ausgangsleistung von ca. 10 mJ des Lasersystems auch mit der Installation des Dazzler beizubehalten. Um dies zu erreichen, erfolgt ein Umbau des nachfolgenden Booster-Verstärkers. In der ursprünglichen Form weist der Strahlengang durch im Booster-Verstärker zwei Durchgänge durch einen mit wassergekühlten Verstärkerkristall auf, wobei der Seed-Laserstrahl mit einer Linse mit  $f=500$  mm in den Kristall fokussiert wird.

Mit der Ersetzung eines Spiegel durch einen zweiteiligen Spiegelhalter, der zwei Spiegel mit einem Durchmesser von 1/2 Zoll trägt und eines zusätzlichen Fokussier spiegels mit  $f = 15$  cm, konnte der Strahlengang so geändert werden, dass der Booster-Verstärker nun vier Durchgänge durch den Verstärkungskristall aufweist (siehe Abb. 8.4). In der alten Version mit zwei Verstärkungsdurchgängen wurde bei einer Pumpleistung von 11 W die Seedenergie von auf  $800 \mu\text{J}$  verstärkt. Mit dem neuen Aufbau konnte bei gleicher Pumpleistung die emittierte Leistung auf 2 mJ gesteigert werden, sodass die Effizienz des Verstärkers stark erhöht wurde. Eine Verringerung der Pumpleistung auf 9 mJ beugt Schäden an den optischen Elementen aufgrund zu hoher Leistung vor.

Mit der Modifikation des Booster-Verstärkers konnte nach der Inbetriebnahme des Dazzler die gleiche Verstärkung des Hauptverstärkersystems und gleiche Pulsenergie der emittierten Laserpulse des gesamten Lasersystems sichergestellt werden.

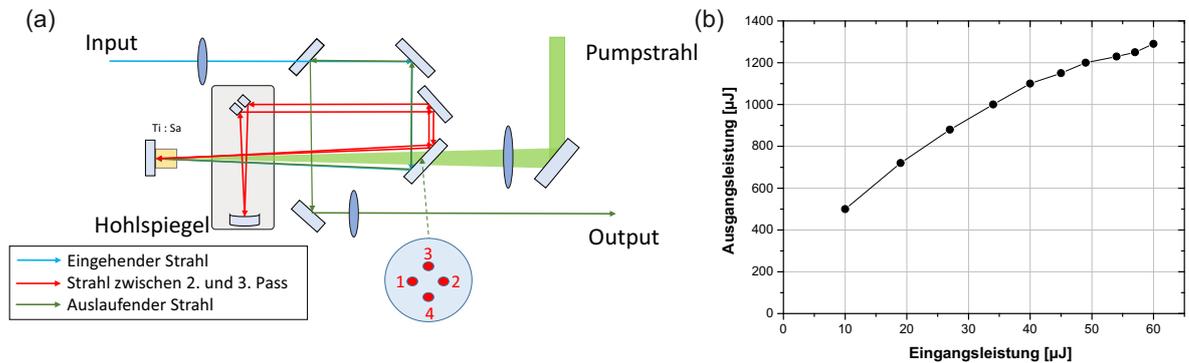


Abbildung 8.4: Veränderter Aufbau des Booster-Vorverstärkers: (a) Schematischer Aufbau des Verstärkers mit vier Durchgängen durch das Verstärkermedium. Ein Hohlspiegel und ein Doppelspiegelhalter (grauer Rahmen) wurden hinzugefügt, um den Strahlengang zwischen dem 2. und 3. Pass (rote Markierung) zu ermöglichen. (b) Ausgangsleistung des Vorverstärkers in Abhängigkeit der Eingangsleistung für eine Pumpenergie von 9 mJ.

### 8.3.2.1 Kontrolle der spektralen Phase

Die spektrale Phase wird mit dem Wizzler der Firma Fastlite gemessen. Die kommerzielle Software kann die spektrale Phase auswerten und eine optimierte spektrale Phase generieren, die von der Dazzler-Steuersoftware eingelesen werden kann. Der Prozess der Optimierung wird nicht genau beschrieben.

Oftmals führt das Ausführen der Optimierung zu längeren Pulsdauern, was vermutlich durch die komplizierten Transmissionseigenschaften der Elementen zwischen Dazzler am Eingang des Verstärkersystems und der Wizzlermessung am Ausgang des Verstärkers begründet ist.

Insbesondere der Verstärkungsprozess und die Kompression im Kompressor, bei der durch die Propagation an Luft schon Selbstphasenmodulation auftritt, stellen nichtlineare Beiträge der Propagation dar, die die Optimierung erschweren.

Wird jedoch eine geringe Amplitude der Feedbackstärke ausgewählt, mehrmals wiederholt und zu Beginn der Prozedur nur geringe Pulsenergien von unter 7 mJ ausgewählt, dann führt die Optimierung zu Laserpulsen mit einem besseren Pulskontrast und einer glatteren spektralen Phase. Abb.8.5 (a) vergleicht dabei die Messung eines Laserpulses vor der Optimierung und (b) nach der Optimierung. Vor der Optimierung weist der zeitliche Verlauf der Intensität einen Vorpuls mit einer Amplitude von 10% des Hauptpulses. Das Spektrum zeigt als Resultat von Selbstphasenmodulation im kollimierten Strahl an Luft ein Minimum bei 780 nm, auf. Die spektralen Phasen hat eine komplizierte Struktur und besitzt Anteilen höherer Ordnung.

Mit der Optimierung der Phase mit Hilfe des Dazzlers konnte die Amplitude des Vorpulses deutlich reduziert. Der Laserpuls besitzt einen um mehr als eine Größenordnung verbesserten Pulskontrast. Ein Vergleich der spektralen Information zeigt, dass die Phase deutlich glatter ist.

Ein Vergleich der Pulsdauern, die mit Hilfe eines Fit einer Gaußfunktion ermittelt wurden, zeigt, dass die Pulsdauer der Hauptpulses dabei leicht von 33,3 fs auf 34,6 fs angewachsen ist. Da die Pulsenergie durch den erhöhten Pulskontrast besser im Hauptpuls konzentriert ist, können durch die Optimierung jedoch höherer Intensitäten erreicht werden. Dies zeigte sich im Lasersystem dadurch, dass bei der Verwendung des optisch-parametrische Verstärker (TOPAS, siehe Abb. 8.3) eine höhere Konversionseffizienz erreicht werden konnte.

Insbesondere ein guter Pulskontrast ist für alle Experimente der Starkfeldphysik wünschenswert, da Vorpulse entscheidend die Dynamik von Prozessen wie der Ionisation von Atomen und die Fragmentierung von Molekülen verändern können (vgl. dazu Kap.5.3).

### 8.3.2.2 Kontrolle der spektralen Amplitude

Für zeitaufgelöste Experimente werden Laserpulse mit möglichst kurzer Pulsdauer benötigt. Auch für die Erzeugung von Few-Cycle-Laserpulsen durch spektrale Verbreiterung mit Hilfe von Edelgas gefüllten Hohlfasern, siehe Kap.8.3.3 ist eine Mindestbandbreite der Laserpulse wünschenswert.

Vor allem für Verstärkersystem mit hoher Verstärkung tritt eine Verringerung der Bandbreite als Folge des Verstärkungsprozesses (engl. Gain narrowing) auf, da die Verstärkung nicht über den gesamten Spektralbereich stattfindet, sondern von wellenlängenabhängigen Verstärkungsprofil des Lasermediums, in diesem Fall Ti:sapphier, abhängt [225]. Obwohl Ti:sapphier es ermöglicht mit Hilfe von Laseroszillatoren Pulse von unter 10 fs zu erzeugen, haben Verstärkersysteme mit Pulsenergien  $>1$  mJ typischerweise eine Verstärkungsbandbreite von ca. 40 nm, was Pulsdauer von 24 fs entspricht [225].

Um diesen Effekt zu kompensieren, ist es möglich mit dem Dazzler die spektrale Amplitude der Eingangslaserpulse zu verändern. Die Pulsmanipulation mit Dazzler kann realisiert werden, indem in der Reflektionsamplitude des Dazzlers ein Loch erzeugt wird. Durch Position, Stärke und Breite kann die Wirkung kontrolliert und optimiert werden. In Abb.8.6 der Pulsdauer auf 30 fs oder gar 25 fs verringert werden. Als Nachteil Modulation im Spektralbereich führt zu Verstärkung von Vor- und Nachpulsen.

Zudem hat die verringerte Leistung des Seedlaserpulses geringe Leistung nach dem Verstär-

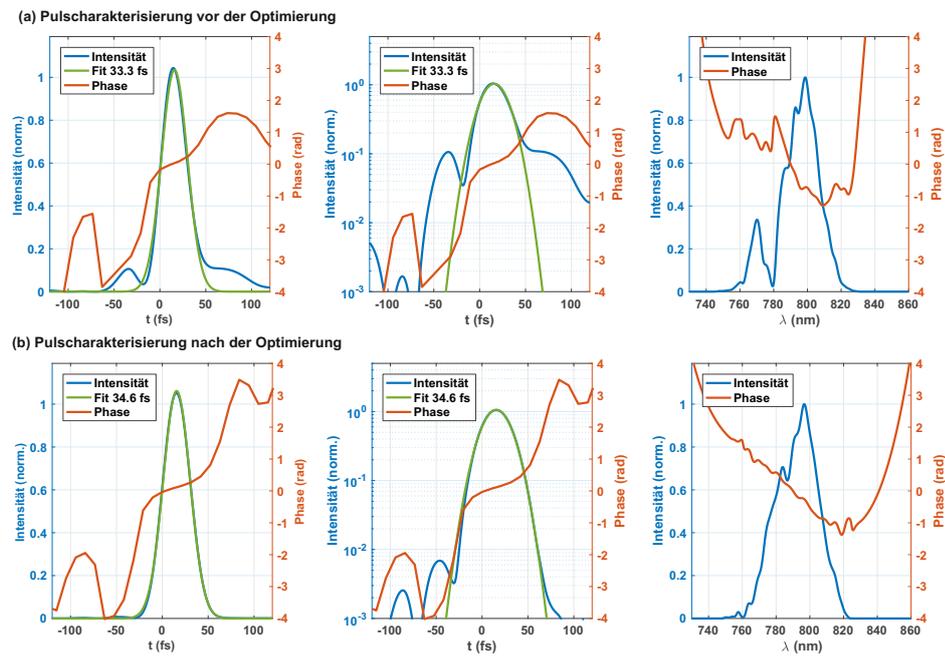


Abbildung 8.5: Pulscharakterisierung mit Wizzler: (a) Vor der Optimierung der Phase zeigt der zeitliche Verlauf der Intensität auf einer linearen (links) und einer logarithmischen (Mitte) Skala, dass dem Hauptpuls ein Vorpuls mit einer Amplitude voraus 10% geht. Ein Fit einer Gaußfunktion des Hauptpulses zeigt eine Pulsdauer von 33,3 fs. Das Spektrum (rechts) zeigt ein Minimum bei 780 nm und eine komplizierte Struktur der spektralen Phasen. (b) Nach der Optimierung der Phase mit Hilfe des Dazzlers besitzt der Laserpuls einen deutlich verbesserten Pulscontrast und die spektrale Phase ist glatt.

kungsprozess zu Folge. So hat der 30 fs nach Kompression nur eine Pulsenergie von 8 mJ. Für 28 fs beträgt die Energie 7,4 mJ, für 26,5 fs 6,8 mJ und für 25 fs nur 5,7 mJ. Diese Verluste könnten jedoch ähnlich wie bei der Modifikation des Booster-Verstärkers leicht wieder durch einen weiteren Pass durch das Verstärkungsmedium kompensiert werden.

Es existieren auch andere Methoden zur Veränderung der Pulsform. Diese bieten allerdings keine so große Flexibilität und Kontrolle verschiedener Parameter. So kann auch die Installation einer doppelbrechende Quarzplatte in Kombination mit einem Polarisator im Verstärker die verstärkte Bandbreite erhöhen [226].

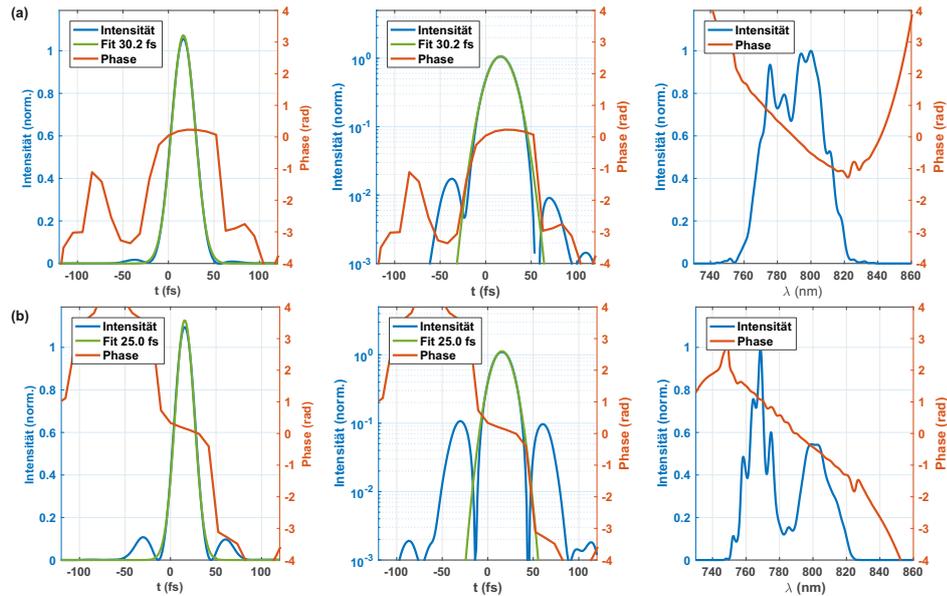


Abbildung 8.6: Pulsmanipulation mit Dazzler: (a) Mit einem Loch in der Reflektionsamplitude des Dazzlers mit einer Stärke von 0.5 bei einer Wellenlänge von 782 nm und einer Breite von 50 nm kann die Pulsdauer des Hauptpulses auf 30 fs verringert werden. Durch die Modulation des Spektrums (rechts) wird die Höhe des Vor- und Nachpulses (links und Mitte) wieder verstärkt. (b) Wird das Loch auf eine Stärke von 0.9 und einer Breite von 100 nm erhöht, kann die Pulsdauer des Hauptpulses auf 25 fs vermindert werden.

### 8.3.3 Erzeugung von Few-Cycle-Laserpulse durch kohärente Kombination

#### 8.3.3.1 Einleitung

Von besonderem Interesse für die Untersuchung sehr schneller Vorgänge, wie der Elektronenbewegung in Atomen und Molekülen, sind ultrakurze Laserpulse, deren Pulsdauer nur wenigen optischen Zyklen entspricht. Gerade die Bereitstellung solcher Few-Cycle-Laserpulse mit hoher Pulsenergie ist für viele Anwendungen sehr wichtig, vor allem für die Erzeugung höherer Harmonischer (HHG) [10] und die Attosekundenphysik [227; 228]. Zur Charakterisierung des zeitabhängigen elektrischen Feldes von Few-Cycle-Laserpulse stellt die Träger-Einhüllenden-Phase (engl. Carrier-Envelope-Phase, CEP) eine wichtige Größe dar. Die Untersuchung von Vorgängen in Abhängigkeit der Carrier-Envelope-Phase (CEP) bieten ein wichtiges Testfeld für das Verständnis und mögliche Ansätze für die Kontrolle der Licht-Materie-Wechselwirkung.

Da in den meisten Fällen nicht ein CEP-stabiles Lasersystem genutzt werden kann, muss die CEP für jeden Laserschuss parallel zum Experiment gemessen werden. Nur dann ist es möglich, die Ergebnisse des Experimentes nach den Werten der CEP zu sortieren und auszuwerten. Zahlreiche Experimente nutzen dazu die stereographische Messung der Elektronenspektren nach der Above-Threshold-Ionisation von Xenon, um die relative CEP eines jeden Pulses zu vermessen [229]. Diese Methode kam auch in dem in Kap. 5.3 dieser Arbeit beschriebenen Experiment zum Einsatz.

Da die Pulsenergie von Few-Cycle-Laserpulsen nicht problemlos skaliert werden kann und für die Messung der CEP ebenfalls ein Teil der Laserpulsenergie benötigt wird, stellt die verfügbare Pulsenergie für viele Experimente einen limitierenden Faktor dar. So wird ein großer Aufwand betrieben, um die Energie von Pulsen mit geringer Pulsdauer zu skalieren. Auch im Rahmen dieser Arbeit wurde an einer Möglichkeit gearbeitet, intensive Few-Cycle-Laserpulse auch für die in Kap. 3.1 beschriebenen Ionenstrahlexperimente verfügbar zu machen, da die Ionisation von Ionen besonders hohe Intensitäten erfordert. Dazu wurde die kohärente Kombination von Few-Cycle-Laserpulsen getestet.

### 8.3.3.2 Kohärente Kombination von Few-Cycle-Laserpulsen

Die Erzeugung von Few-Cycle-Laserpulsen basiert auf der spektralen Verbreiterung durch Selbstphasenmodulation (SPM) in einer mit Edelgas gefüllten Hohlleiter [162]. Diese Technik wird routinemäßig in einer großen Anzahl von Experimenten eingesetzt. Dennoch sind die erreichbaren Energien typischerweise in der erreichbaren Pulsenergie auf ca. 1 mJ limitiert [230]. Der Grund dafür ist die Selbstfokussierung und Ionisation am Fasereingang, die zur einer verringerten Fasertransmission und schlechteren spektralen Verbreiterung führt. Ein Ansatz, um diese Limitierungen zu überwinden, stellt die Verringerung der Intensität am Punkt der höchsten Intensität am Eingang der Faser dar. Dies kann durch eine lange Fokussierung in Kombination mit einer langen Hohlleiter bei Verwendung eines Druckgradienten, die durch eine differentielle Pumpstufe einen geringeren Gasdruck am Fasereingang bereitstellt, ermöglicht werden [231]. Damit wurde die Erzeugung von 5-mJ-Few-Cycle-Pulsen in 2,2 m langen Hohlleitern demonstriert [230].

Eine andere Möglichkeit bietet die kohärente Addition von separat verbreiterten Pulsen. Der ankommende Laserpuls wird dabei in mehrere identische Repliken aufgeteilt. Die räumlich oder zeitlich geteilten Pulse durchlaufen die nichtlineare Verbreiterung und werden zu einem einzigen Impuls rekombiniert und komprimiert [232; 233]. In den letzten Jahren wurde diese sogenannte Divided-Pulse-Nonlinear-Compression (DPNLC) erfolgreich für die Erhöhung der Pulsenergie von Faserlasern eingesetzt [232]. Die Grundidee dieses Ansatzes ist, durch die Aufteilung der Pulsenergie die Nichtlinearitäten höherer Ordnung und Ionisation, die die Effizienz der Pulskompression erheblich einschränken, zu reduzieren. Die Teilung des Eingangslaserpulses in  $N$ -Repliken reduziert die Spitzenintensität in der Hohlleiter um den Faktor  $N$ . Dies kann eine kontrollierte spektrale Verbreiterung jeder einzelnen Pulskopie ermöglichen, bevor diese zu einem einzigen hochenergetischen Puls kombiniert werden.

Um die Aufteilung des eingehenden Pulses in mehrere Kopien für das DPNLC zu erreichen, gibt es zwei Verfahren. Dazu können doppelbrechende Kristalle verwendet werden, wobei die Differenz zwischen den Brechungsindizes der langsamen und schnellen Achse zur zeitlichen Trennung der orthogonalen Polarisationskomponenten des linear polarisierten Eingangsim-

pulses ausgenutzt wird [232].

Nach der Verbreiterung wird die Kombination durch einen zweiten Satz von Kristallen erreicht. Da die Dickenanpassung zwischen der Teilungs- und Kombinationsstufe sehr wichtig ist [234], ist es einfacher, die Verzögerung durch Ausbreitung der Pulse nach Drehung des Polarisationszustandes um 90 Grad mit einem Faraday-Rotator zu beseitigen [232]. Die Verwendung von optischen Elementen wie Kristallen und einem Faraday-Rotator in Kombination mit breitbandigen und hochenergetischen Pulsen ist sehr kritisch und die durch diese Technik erreichte Verzögerung ist nur gering. Für größere Verzögerungen bietet es sich an, die Aufteilung über einen Interferometeraufbau zu realisieren. Dabei müssen die Pulse durch breitbandige optische Polarisatoren geteilt werden. Nach der Ausbreitung durch die Hohlleiter werden die Pulse mit einem zweiten Interferometer rekombiniert.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden ein Experiment durchgeführt, um die Eignung der kohärenten Kombination von durch Hohlleiterkompression erzeugten Few-Cycle-Pulsen zu testen. Dieses Experiment wurde mit Unterstützung von Arno Klenke aus der Arbeitsgruppe von Prof. Limpert (Institute of Applied Physics Jena) durchgeführt. Die Durchführung und Auswertung war Teil der Masterarbeit von Yinyu Zhang [235]. Daher wird hier nur eine Zusammenfassung über die Ergebnisse gegeben. Zu beachten ist, dass diese Experimente vor der Installation eines Dazzlers in das Thales-Lasersystem durchgeführt wurden.

### 8.3.3.3 Experiment zur kohärenten Kombination

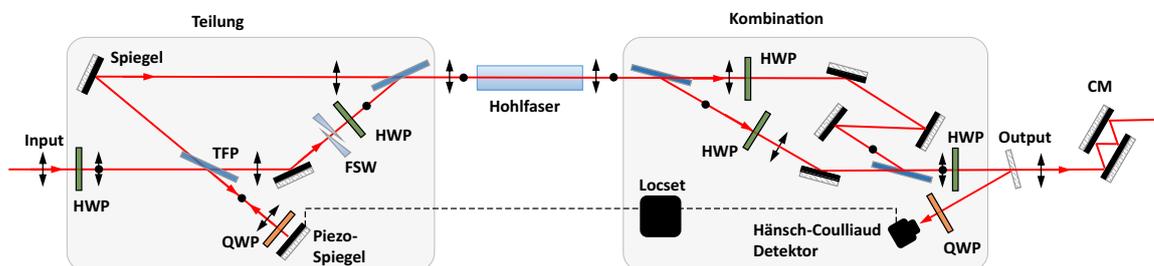


Abbildung 8.7: Aufbau des Experimentes zur kohärenten Kombination von Few-Cycle-Laserpulsen: Je ein Interferometer bestehend aus Halbwellenplatten(HWP), Viertelwellenplatten(QWP) und Dünnschichtpolarisatoren(engl. Thin-Film-Polarizer, TFP) wird zur Teilung und Kombination der Laserpulse genutzt. Quarzglaskeile (Fused-Silica-Wedge, FSW) und geschichtete Spiegel (CM) dienen der Kompression.

Der schematische Aufbau des Experimentes ist in Abb. 8.7 dargestellt. Es wurden die Laserpulse des Thales-Lasersystems mit einer Pulsdauer von 36 fs mit einer Repetitionsrate von 1 kHz genutzt. Zwei verschiedene Mach-Zehner-Interferometer wurden zum Aufteilen und Kombinieren der Laserpulse eingesetzt. In jedem Interferometer wurde ein Paar identischer Dünnschichtpolarisatoren (TFP) zur räumlichen Teilung und Rekombination verwendet.

Im ersten Interferometer wird der ankommende linear polarisierte Laserpuls in zwei orthogonal polarisierte Puls kopien aufgeteilt, die durch eine Verzögerung von mehreren Pikosekunden getrennt sind. Die Polarisation des Strahls wird mit einer Halbwellenplatte so gedreht, dass der TFP den ankommenden Puls in zwei Teilpulse aufteilt. Der Strahl mit s-Polarisation, der vom TFP reflektiert wurde, durchläuft eine Viertelwellenplatte (QWP) doppelt, während er

unter senkrechtem Einfall von einem durch einen Piezo motorisierten Spiegel reflektiert wird. So wird die Polarisation um  $90^\circ$  gedreht und der Strahl vom ersten TFP und dem folgenden zweiten TFP transmittiert. Die p-Polarisation des zweiten Strahls im Interferometer, der vom ersten TFP transmittiert wurde, wird von einer Halbwellenplatte gedreht, sodass dieser vom zweiten TFP reflektiert wird. Danach werden beide Pulskopien mit orthogonaler Polarisation, die zeitlich separiert sind, sich aber nun wieder kollinear ausbreiten, mit einem Hohlspiegel mit einem Krümmungsradius von 2,5 m auf den Fasereingang fokussiert.

Die Hohlleiter hat einen inneren Durchmesser von  $300 \mu\text{m}$  und eine Länge von 1 m. Die Kammer der Faser wurde mit Neon bei einem konstanten Druck gefüllt.

In dem Interferometer für die Teilung weisen die Strahlenwege unterschiedliche Dispersion auf, da der eine Arm zwei Durchgänge durch den TFP und der andere Arm nur einen Durchgang durch den TFP umfasst. Um die gleiche spektrale Phase der eingehenden Laserpulse vor der spektralen Verbreiterung sicherzustellen, wurden daher in dem einen Arm des Interferometers zusätzliche Glaskeile positioniert. Die Verzögerung zwischen beiden Pulsen, die sich aus der Wegstreckendifferenz im Interferometer ergibt, beträgt 830 ps. In die Faser wird zuerst der Puls mit der s-Polarisation und später der Puls mit der p-Polarisation eingekoppelt.

Nach Kollimation mit einem Silberspiegel, welcher einen Krümmungsradius von 2,5 m aufweist, werden die Laserpulse im zweiten Interferometer kombiniert. Zuerst dreht eine breitbandige Halbwellenplatte den Polarisationszustand beider Pulse, sodass der verzögerte Puls vom TFP reflektiert und auf den Interferometerarm mit der kürzeren Wegstrecke gelenkt wird. Der erste Puls wird vom TFP transmittiert und erfährt die längere Wegstrecke, um die Zeitdifferenz zwischen beiden Pulsen zu kompensieren. Wieder wird in beiden Armen des Interferometers der Polarisationszustand mittels Halbwellenplatten rotiert, sodass eine räumliche Kombination nach dem letzten TFP erreicht wird. Die genaue Anpassung der optischen Weglängendifferenz zwischen beiden Interferometern stellt die zeitliche Kombination der beiden Pulse sicher. Die TFP (Layertec), die für die Kombination verwendet werden, erfordert einen Einfallswinkel von  $75^\circ$  und unterstützt eine Bandbreite von 550-900 nm. Wie bereits von Kienel *et al.* [236] demonstriert wurde, kann der resultierende Polarisationszustand nach der Kombination zur aktiven Stabilisierung der Interferometer genutzt werden. Dabei wird ein kleiner Teil des kombinierten Strahles in Richtung eines Hänsch-Colliaud-Detektors [237] reflektiert. Das erzeugte Fehlersignal wird für die Rückkopplung über eine PID-Steuerung (TEM) auf den von einem Piezomotor getriebenen Spiegel im ersten Interferometer genutzt.

Nach der Kombination werden die Pulse durch einen Aufbau von geschirpten Spiegeln in der Doppelwinkelkonfiguration (engl. double-angle chirped mirrors) (Ultrafast Innovations) komprimiert, die per Reflexion eine Dispersion von  $-50 \text{ fs}^2$  beziehungsweise insgesamt  $-400 \text{ fs}^2$  erzeugen. Die Optimierung der Dispersion geschieht über ein Paar Quarzglaskeile. Die spektrale Verbreiterung der Pulse wurde mit einem Spektrometer (Oceon Optics USB2000) gemessen und die Pulsdauern mit einem SPIDER (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction) der Firma APE gemessen.

#### 8.3.3.4 Ergebnisse

Nach einer Aufteilung der Pulse im ersten Interferometer hat jeder Puls ungefähr die Hälfte der Eingangsenergie, da die Verluste im ersten Interferometer sehr klein sind. Trotz des verwendeten Ansatzes der Aufteilung der Pulse wurden für diese Experimente nicht die ge-

samte Leistung des Lasersystems genutzt. Wurden Pulse mit einer Energie von 1.3 mJ für die Aufteilung verwendet, betrug bei einem Druck von 2.3 bar Neon die Gesamtenergie nach der Faser 900  $\mu\text{J}$  (450  $\mu\text{J}$  in jeder Puls kopie). Dies ergibt eine Transmissionseffizienz von ca. 70 % und ist ein typischer Wert für ein Hohlfaseraufbau. Nach der Kombination der Pulse betrug die Pulsenergie 600  $\mu\text{J}$ . Dies entspricht einer Kombinationseffizienz von ca. 66 %. Die Pulsdauer des kombinierten Pulses betrug 10,5 fs (siehe Abb.8.8 (a)).

Für eine zweite genutzte Eingangspulsenergie von 3.1 mJ bzw. 1,55 mJ pro Puls kopie konnten nach der Faser nur 0,73 mJ pro Puls gemessen werden, sodass mit nur 50% die Effizienz der Faser schon aufgrund der hohen Intensität vermindert war. Für diese Bedingungen betrug die Energie nach der Kombination 0,84 mJ bei einer Kombinationseffizienz von nur 57 %. Dabei konnten die Pulse auf eine Pulsdauer von 7,5 fs komprimiert werden (siehe Abb. 8.8 (b)).

Aufgrund der gemessenen Pulsdauer und beobachteten stabilen Interferenzmuster bei Überlagerung der Strahlen konnte verifiziert werden, dass die Stabilisierung der Interferometerlängen durch den Hänsch-Colliaud-Detektor funktionierte.

Damit wurde gezeigt, dass der Ansatz der Divided Pulse Nonlinear Compression (DPNLC) für die Hohlfaserkompression von Few-Cycle-Pulsen möglich ist. Theoretisch kann damit die erreichbare Pulsenergie mit der Anzahl der erzeugten Puls kopien skaliert werden. Allerdings war der Gewinn an Pulsenergie im Vergleich zur Energie desselben Prozesses ohne den Ansatz der Aufteilung sehr gering und steht in keinem Verhältnis zu dem großen technischen Aufwand und dem komplexen Aufbau mit einer Vielzahl auf Few-Cycle-Pulse optimierten Optiken. Die Effizienz ist vor allem limitiert durch die vielen benötigten optischen Elemente, die alle für eine große Bandbreite von 200-300 nm ausgelegt sein müssen und über diesen großen spektralen Bereich merkliche Verluste aufweisen. Die kritischen Elemente sind die breitbandigen TFPs, die eine mittlere Reflektivität von 83 % besitzen. Ein weitere Schwierigkeit des Experimentes war, dass die Kombination von Interferometer und Hohlfaser sehr hohe Anforderungen an die Stabilität der Strahlage setzt.

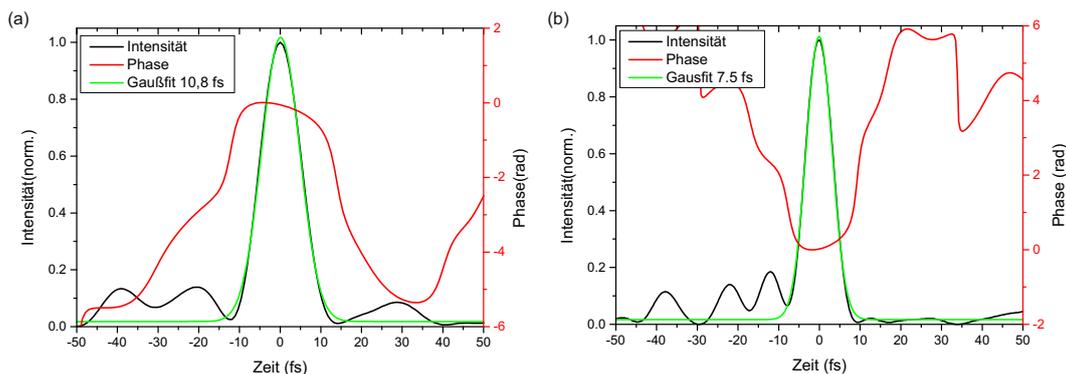


Abbildung 8.8: Spidermessung von Few-Cycle-Puls nach Kombination: (a) Kombinierte Pulsenergie von 600  $\mu\text{J}$ . Die ermittelte Pulsdauer beträgt  $10,8 \pm 0,2 \text{ fs}$ . (b) Kombinierte Pulsenergie von 800  $\mu\text{J}$ . Die ermittelte Pulsdauer beträgt  $7,5 \pm 0,2 \text{ fs}$ .

Zudem konnten die Pulsdauern nicht wie erwünscht auf etwa 5 fs komprimiert werden. Dies erklärt sich durch die vergleichsweise lange Eingangspulsdauer von 35 fs, sodass für 5 fs eine Verbreiterung des Spektrum um einen Faktor 7 nötig ist. Typischerweise wird mit einem einzelnen Faseraufbau eine Verbreiterung um einen Faktor 5 erreicht. Dabei wurde auch beobachtet, dass die spektrale Phase bei höheren Drücken in der Hohlfaser durch die eingesetzten

gechirpten Spiegel nicht vollständig kompensiert werden konnte. Durch den später im Lasersystem vorgenommenen Einbau eines akustooptischen Modulators im Thales Lasersystem ist zu erwarten (siehe Kap. 8.3.2), dass bei einer Wiederholung des Experimentes bessere Voraussetzungen vorliegen.

#### **8.3.3.5 Zusammenfassung**

In einem proof-of-principle-Experiment konnte die Divided-Pulse-Nonlinear-Compression (DP-NLC) für die Hohlfaserkompression von Few-Cycle-Pulsen demonstriert werden. Dieses Konzept kann leicht auf höhere Pulsenergien skaliert werden. So können längere Fasern mit einem Druckgradienten verwendet werden [230]. Allerdings erwies sich der Einsatz von Interferometern zur Aufteilung und Kombination in der Umsetzung als sehr anspruchsvoll.

# Literaturverzeichnis

- [1] R. P. Feynman, R. B. Leighton, and M. Sands, *Feynman-Vorlesungen über Physik. Band 1: Hauptsächlich Mechanik, Strahlung und Wärme*, Oldenbourg, 1988. 1
- [2] K. Popper, *Logik der Forschung*, Springer-Verlag Wien, Vienna, 1935. 1
- [3] I. V. Hertel and C.-P. Schulz, *Atome, Moleküle und optische Physik 2*, 2010. 1
- [4] F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 163 (2009). 1, 24
- [5] L. Keldysh, *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965). 1, 4, 6, 23, 28
- [6] S. L. Chin, F. Yergeau, and P. Lavigne, *J. Phys. B At. Mol. Phys.* **18**, L213 (1985). 1
- [7] P. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993). 1, 5, 10, 45, 52
- [8] G. G. Paulus, W. Becker, W. Nicklich, and H. Walther, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **27**, L703 (1994). 1, 5
- [9] A. Becker, R. Dörner, and R. Moshhammer, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **38**, S753 (2005). 1, 5
- [10] Z. Chang and P. Corkum, *J. Opt. Soc. Am. B* **27**, B9 (2010). 1, 5, 105
- [11] P. B. Corkum and F. Krausz, *Nat. Phys.* **3**, 381 (2007). 1
- [12] T. Rathje, A. M. Sayler, S. Zeng, P. Wustelt, H. Figger, B. D. Esry, and G. G. Paulus, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 093002 (2013). 2, 14, 21, 93
- [13] W. Ketterle, A. Dodhy, and H. Walther, *J. Chem. Phys.* **89**, 3442 (1988). 2, 15, 67
- [14] D. Kielpinski, R. T. Sang, and I. V. Litvinyuk, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **47** (2014). 2, 24, 29
- [15] L. A. MacColl, *Phys. Rev.* **40**, 621 (1932). 2, 23
- [16] R. Landauer and T. Martin, *Rev. Mod. Phys.* **66**, 217 (1994). 2, 23
- [17] A. S. Landsman and U. Keller, *Phys. Rep.* **547**, 1 (2015). 2, 23, 24, 27
- [18] A. L'Huillier, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, *Phys. Rev. A* **27**, 2503 (1983). 2, 46
- [19] B. Walker, B. Sheehy, L. F. DiMauro, P. Agostini, K. J. Schafer, and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1227 (1994). 2, 45, 46

- [20] New Scientist, 22 Oktober, 1981. 3
- [21] A. Giusti-Suzor, X. He, O. Atabek, and F. H. Mies, Phys. Rev. Lett. **64**, 515 (1990). 3, 13
- [22] P. H. Bucksbaum, A. Zavriyev, H. G. Muller, and D. W. Schumacher, Phys. Rev. Lett. **64**, 1883 (1990). 3, 13
- [23] S. Lepp, P. C. Stancil, and A. Dalgarno, J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. **35**, 201 (2002). 3, 66
- [24] T. Brabec and F. Krausz, Rev. Mod. Phys. **72**, 545 (2000). 4
- [25] G. G. Paulus, H. Walther, W. Becker, F. Grasbon, R. Kopold, and D. B. Milosevic, Adv. At. Mol. Opt. Physics, Vol 48 **48**, 35 (2002). 4, 5, 10
- [26] V. S. Popov, Physics-Uspekhi **47**, 855 (2004). 4, 7, 9
- [27] M. Y. Ivanov, M. Spanner, and O. Smirnova, J. Mod. Opt. **52**, 165 (2005). 4, 6, 28, 40
- [28] A. Becker and F. H. Faisal, J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. **38** (2005). 4
- [29] S. V. Popruzhenko, J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. **47** (2014). 4
- [30] A. Ludwig, J. Maurer, B. W. Mayer, C. R. Phillips, L. Gallmann, and U. Keller, Phys. Rev. Lett. **113**, 243001 (2014). 5
- [31] P. Mulser and D. Bauer, *High Power Laser-Matter Interaction*, volume 238 of *Springer Tracts in Modern Physics*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2010. 6, 7, 8, 94
- [32] N. Shvetsov-Shilovski, D. Dimitrovski, and L. Madsen, Phys. Rev. A **85**, 1 (2012). 6, 42, 53, 96
- [33] L. Landau and E. Lifschitz, *Lehrbuch der Theoretischen Physik*, Akademie-Verlag Berlin, 1979. 7, 94, 96
- [34] M. V. Ammosov and V. P. Krainov, Sov. Phys. JETP **64**. 7, 53, 54
- [35] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and Terent'ev M V, Sov. Phys. JETP **23**, 924 (1966). 7, 8, 9, 10, 42
- [36] O. I. Tolstikhin, T. Morishita, and L. B. Madsen, Phys. Rev. A **84**, 053423 (2011). 7
- [37] N. Delone and V. Krainov, JOSA B **8**, 1207 (1991). 7
- [38] D. Bauer and P. Mulser, Phys. Rev. A **59**, 569 (1999). 8
- [39] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terentev, JETP **23**, 924 (1966). 8
- [40] J. Kaushal and O. Smirnova, Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys. **88** (2013). 9, 28
- [41] H. Ni, U. Saalman, and J.-M. Rost, Phys. Rev. A **97**, 013426 (2018). 9, 27, 28, 41, 42
- [42] G. Yudin and M. Ivanov, Phys. Rev. A **64**, 6 (2001). 9, 40

- [43] M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 083001 (2015). 9, 28, 40, 41
- [44] M. Klaiber and J. S. Briggs, *Phys. Rev. A* **94**, 1 (2016). 9, 40
- [45] V. D. Mur, S. V. Popruzhenko, and V. S. Popov, *J. Exp. Theor. Phys.* **92**, 777 (2001). 9, 10, 41, 42
- [46] R. Boge, C. Cirelli, A. S. Landsman, S. Heuser, A. Ludwig, J. Maurer, M. Weger, L. Gallmann, and U. Keller, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 103003 (2013). 9, 28, 35
- [47] W. Demtröder, *Molekülphysik: Theoretische Grundlagen und experimentelle Methoden*, Oldenbourg Wissenschaftsverlag, 2013. 11
- [48] W. Demtröder, *Experimentalphysik 3*, 2016. 11
- [49] I. V. Hertel and C.-P. Schulz, *Atome, Moleküle und optische Physik 2*, Springer-Lehrbuch, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2010. 12
- [50] B. Sheehy and L. F. DiMauro, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **47**, 463 (1996). 13
- [51] A. Guisti-Suzor, F. H. Mies, L. F. DiMauro, E. Charron, and B. Yang, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **28**, 309 (1995). 13, 67
- [52] J. H. Posthumus, J. Plumridge, L. J. Frasinski, K. Codling, E. J. Divall, A. J. Langley, and P. F. Taday, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **33** (2000). 13
- [53] A. D. Bandrauk and M. L. Sink, *J. Chem. Phys.* **74**, 1110 (1981). 13
- [54] L. J. Frasinski, K. Codling, P. Hatherly, J. Barr, I. N. Ross, and W. T. Toner, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2424 (1987). 13
- [55] P. Schwendner, F. Seyl, and R. Schinke, *Chem. Phys.* **217**, 233 (1997). 13, 74
- [56] T. Zuo and a. D. Bandrauk, *Phys. Rev. A* **52**, 2511 (1995). 13
- [57] C. Wunderlich, E. Kobler, H. Figger, and T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2333 (1997). 14
- [58] K. Sandig, H. Figger, and T. Hansch, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4876 (2000). 14
- [59] I. D. Williams, P. McKenna, B. Srigengan, I. M. G. Johnston, W. A. Bryan, J. H. Sanderson, A. El-Zein, T. R. J. Goodworth, W. R. Newell, P. F. Taday, and A. J. Langley, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **33**, 2743 (2000). 14
- [60] W. Newell, I. Williams, and W. Bryan, *Eur. Phys. J. D* **26**, 99 (2003). 14
- [61] D. Pavicic, A. Kiess, T. W. Hänsch, and H. Figger, *Eur. Phys. J. D - At. Mol. Opt. Phys.* **26**, 39 (2003). 14
- [62] I. Ben-Itzhak, P. Q. Wang, J. F. Xia, A. M. Sayler, M. A. Smith, K. D. Carnes, and B. D. Esry, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 073002 (2005). 14
- [63] A. M. Sayler, *Measurements of Ultrashort Intense Laser-Induced Fragmentation of Simple Molecular Ions*, Dissertation, Kansas State University, 2008. 14, 19

- [64] M. Odenweller, J. Lower, K. Pahl, M. Schütt, J. Wu, K. Cole, a. Vredenburg, L. P. Schmidt, N. Neumann, J. Titze, T. Jahnke, M. Meckel, M. Kunitski, T. Havermeier, S. Voss, M. Schöffler, H. Sann, J. Voigtsberger, H. Schmidt-Böcking, and R. Dörner, *Phys. Rev. A* **89**, 013424 (2014). 14, 21
- [65] J. B. Greenwood, I. M. Johnston, P. McKenna, I. D. Williams, T. R. Goodworth, J. H. Sanderson, W. A. Bryan, A. A. El-Zein, W. R. Newell, A. J. Langley, and E. J. Divall, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 2330011 (2002). 14
- [66] J. B. Greenwood, G. F. Collins, J. Pedregosa-Gutierrez, J. McKenna, A. Murphy, and J. T. Costello, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **36**, L235 (2003). 14
- [67] M. Suresh, J. McKenna, B. Srigengan, I. Williams, E. English, S. Stebbings, W. Bryan, W. Newell, E. Divall, C. Hooker, and A. Langley, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* **235**, 216 (2005). 14
- [68] P. Wustelt, M. Möller, T. Rathje, A. M. Sayler, T. Stöhlker, and G. G. Paulus, *Phys. Rev. A* **91**, 031401 (2015). 14, 21, 32
- [69] M. von Ardenne, *Tabellen der Elektronenphysik, Ionenphysik und Übermikroskopie Band II*, Deutscher Verlag der Wissenschaften Berlin, 1956. 15, 16
- [70] P. Wustelt, *Erzeugung eines Ionenstrahls mittels einer Duoplasmatron-Ionenquelle*, Bachelorarbeit, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2011. 15
- [71] C. Wunderlich, H. Figger, and T. W. Ha, *Phys. Rev. A* **62**, 1 (2000). 15
- [72] T. S. Green, *Reports Prog. Phys.* **37**, 1257 (1974). 15
- [73] H. Liebl and W. Harrison, *Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys.* **22**, 237 (1976). 15
- [74] W. Ketterle, *Spektroskopie an Heliumhydrid und am dreiatomigen Wasserstoffmolekül*, Dissertation, München, München, 1986. 17, 47, 70
- [75] A. M. Sayler, P. Q. Wang, K. D. Carnes, and I. Ben-Itzhak, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **40**, 4367 (2007). 17, 36, 55, 98
- [76] T. Rathje, *Photodissoziation des Wasserstoffmolekülions durch Einzelzyklenlaserpulse*, Dissertation, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2013. 18, 19
- [77] P. Q. Wang, A. M. Sayler, K. D. Carnes, J. F. Xia, M. a. Smith, B. D. Esry, and I. Ben-Itzhak, *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **74**, 1 (2006). 18, 19
- [78] Roentdek, The fADC8 fast sampling ADC unit. 19
- [79] P. Wustelt, *Ionisation atomarer Ionen in intensiven Laserfeldern*, Masterarbeit, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2013. 19
- [80] A. T. J. B. Eppink and D. H. Parker, *Rev. Sci. Instrum.* **68**, 3477 (1997). 20
- [81] R. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, J. Ullrich, and H. Schmidt-Böcking, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms* **108**, 425 (1996). 20

- [82] U. J. R. Moshhammer, A. Dorn, R. D. Rner, L. P. H. Schmidt, H. Schmidt, and Cking, **1463** (2003). 20, 21
- [83] C. M. Maharjan, A. S. Alnaser, X. M. Tong, B. Ulrich, P. Ranitovic, S. Ghimire, Z. Chang, I. V. Litvinyuk, and C. L. Cocke, *Phys. Rev. A* **72**, 041403 (2005). 20, 24, 27, 31, 38, 50, 51
- [84] L. Arissian, C. Smeenk, F. Turner, C. Trallero, A. V. Sokolov, D. M. Villeneuve, A. Staudte, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 133002 (2010). 20
- [85] A. Pfeiffer, C. Cirelli, M. Smolarski, R. Dörner, and U. Keller, *Nat. Phys.* **7**, 428 (2011). 20, 24, 46, 51
- [86] H. Akagi, T. Otake, A. Staudte, A. Shiner, F. Turner, R. Dörner, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *Science* (80-. ). **325**, 1364 (2009). 20
- [87] J. Wu, L. Schmidt, M. Kunitski, M. Meckel, S. Voss, H. Sann, H. Kim, T. Jahnke, a. Czasch, and R. Dörner, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 1 (2012). 20
- [88] X. Wang and J. H. Eberly, *Phys. Rev. A* **86**, 013421 (2012). 21
- [89] E. Merzbacher, *Phys. Today* **55**, 44 (2002). 22
- [90] G. Gamow, *Zeitschrift für Phys.* **51**, 204 (1928). 22
- [91] M. Büttiker and R. Landauer, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1739 (1982). 22, 23, 24
- [92] H. G. Winful, *Phys. Rep.* **436**, 1 (2006). 23
- [93] E. H. Hauge and J. A. Støvneng, *Rev. Mod. Phys.* **61**, 917 (1989). 23
- [94] C. de Carvalho and H. Nussenzveig, *Phys. Rep.* **364**, 83 (2002). 23
- [95] E. Yakaboylu, M. Klaiber, H. Bauke, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **88**, 1 (2013). 23, 28
- [96] P. Carruthers and M. M. Nieto, *Rev. Mod. Phys.* **40**, 411 (1968). 23
- [97] H. M. Wiseman, *New J. Phys.* **9** (2007). 23
- [98] E. Yakaboylu, M. Klaiber, and K. Z. Hatsagortsyan, *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **90**, 1 (2014). 23, 28, 40
- [99] G. Nimtz, *Phys. J.* **49**, 1119 (1993). 23
- [100] P. Thoma and T. Weiland, *Phys. J.* **50**, 313 (1994). 23
- [101] E. P. Wigner, *Phys. Rev.* **98**, 145 (1955). 23, 40
- [102] A. M. Zheltikov, *Physics-Uspekhi* **60**, 1087 (2017). 24
- [103] P. Eckle, M. Smolarski, P. Schlup, J. Biegert, A. Staudte, M. Schöffler, H. G. Müller, R. Dörner, and U. Keller, *Nat. Phys.* **4**, 565 (2008). 24, 28
- [104] A. N. Pfeiffer, C. Cirelli, M. Smolarski, D. Dimitrovski, M. Abu-samaha, L. Madsen, and U. Keller, *Nat. Phys.* **8**, 76 (2011). 24, 26, 27, 28, 32, 36, 39, 40, 42, 44

- [105] P. Eckle, A. N. Pfeiffer, C. Cirelli, A. Staudte, R. Dörner, H. G. Muller, M. Buttiker, and U. Keller, *Science* (80-. ). **322**, 1525 (2008). 27, 42, 53
- [106] A. S. Landsman, M. Weger, J. Maurer, R. Boge, A. Ludwig, S. Heuser, C. Cirelli, L. Gallmann, and U. Keller, *Optica* **1**, 343 (2014). 27
- [107] A. S. Landsman and U. Keller, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **47**, 204024 (2014). 27
- [108] N. Camus, E. Yakaboylu, L. Fechner, M. Klaiber, M. Laux, Y. Mi, K. Z. Hatsagortsyan, T. Pfeifer, C. H. Keitel, and R. Moshhammer, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 1 (2017). 27, 28
- [109] D. Shafir, H. Soifer, B. D. Bruner, M. Dagan, Y. Mairesse, S. Patchkovskii, M. Y. Ivanov, O. Smirnova, and N. Dudovich, *Nature* **485**, 343 (2012). 27
- [110] M. Lein, *Nature* **485**, 313 (2012). 27
- [111] L. Torlina, F. Morales, J. Kaushal, I. Ivanov, A. Kheifets, A. Zielinski, A. Scrinzi, H. G. Muller, S. Sukiasyan, M. Ivanov, and O. Smirnova, *Nat. Phys.* , 1 (2015). 27
- [112] N. Teeny, E. Yakaboylu, H. Bauke, and C. H. Keitel, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 063003 (2016). 27
- [113] M. Yuan, P. Xin, T. Chu, and H. Liu, *Opt. Express* **25**, 23493 (2017). 27
- [114] T. Zimmermann, S. Mishra, B. R. Doran, D. F. Gordon, and A. S. Landsman, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 233603 (2016). 27
- [115] H. Ni, U. Saalman, and J.-M. Rost, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 023002 (2016). 27, 28, 43
- [116] Q. Zhang, G. Basnayake, A. Winney, Y. F. Lin, D. Debrah, S. K. Lee, and W. Li, *Phys. Rev. A* **96**, 1 (2017). 28
- [117] M. Klaiber, E. Yakaboylu, H. Bauke, K. Hatsagortsyan, and C. Keitel, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 153004 (2013). 28
- [118] G. Yudin and M. Ivanov, *Phys. Rev. A* **64**, 035401 (2001). 28
- [119] C. Hofmann, A. S. Landsman, A. Zielinski, C. Cirelli, T. Zimmermann, A. Scrinzi, and U. Keller, *Phys. Rev. A* **90**, 043406 (2014). 28
- [120] H. Ni, N. Eicke, C. Ruiz, J. Cai, F. Oppermann, N. I. Shvetsov-Shilovski, and L.-W. Pi, *Phys. Rev. A* **98**, 013411 (2018). 28
- [121] G. G. Paulus, W. Nicklich, F. Zacher, P. Lambropoulos, and H. Walther, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **29**, L249 (1996). 29
- [122] U. S. Sainadh, H. Xu, X. Wang, Atia-Tul-Noor, W. C. Wallace, N. Douguet, A. W. Bray, I. Ivanov, K. Bartschat, A. Kheifets, R. T. Sang, and I. V. Litvinyuk, *arXiv* , 1707.05445 (2017). 29
- [123] A. N. Pfeiffer, C. Cirelli, M. Smolarski, and U. Keller, *Chem. Phys.* **414**, 84 (2013). 32, 34

- [124] A. Monmayrant, S. Weber, and B. Chatel, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 103001 (2010). 36, 54
- [125] A. Becker, L. Plaja, P. Moreno, M. Nurhuda, and F. H. M. Faisal, *Phys. Rev. A* **64**, 023408 (2001). 38
- [126] X. M. Tong, Z. X. Zhao, and C. D. Lin, *Phys. Rev. A* **66**, 033402 (2002). 38, 54
- [127] X. M. Tong and C. D. Lin, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **38**, 2593 (2005). 38, 42, 53, 54
- [128] I. Barth and O. Smirnova, *Phys. Rev. A* **84**, 1 (2011). 41
- [129] Q. Zhang, P. Lan, and P. Lu, *Phys. Rev. A* **90**, 043410 (2014). 42
- [130] A. Fleischer, H. Wörner, L. Arissian, L. Liu, M. Meckel, A. Rippert, R. Dörner, D. Villeneuve, P. Corkum, and A. Staudte, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 7 (2011). 45, 46, 92
- [131] A. N. Pfeiffer, C. Cirelli, M. Smolarski, R. Dörner, and U. Keller, *Nat. Phys.* **7**, 428 (2011). 45, 92
- [132] Y. Zhou, C. Huang, Q. Liao, and P. Lu, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 1 (2012). 45, 92
- [133] W. Becker, X. Liu, P. Ho, and J. Eberly, *Rev. Mod. Phys.* **84**, 1011 (2012). 45, 53
- [134] T. Weber, M. Weckenbrock, a. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, F. Afaneh, G. Urbasch, M. Vollmer, H. Giessen, and R. Dörner, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 443 (2000). 45
- [135] B. Bergues, M. Kübel, N. G. Johnson, B. Fischer, N. Camus, K. J. Betsch, O. Herrwerth, A. Senftleben, A. M. Sayler, T. Rathje, T. Pfeifer, I. Ben-Itzhak, R. R. Jones, G. G. Paulus, F. Krausz, R. Moshhammer, J. Ullrich, and M. F. Kling, *Nat Commun* **3**, 813 (2012). 45
- [136] M. Kübel, K. J. Betsch, N. G. Kling, A. S. Alnaser, J. Schmidt, U. Kleineberg, Y. Deng, I. Ben-Itzhak, G. G. Paulus, T. Pfeifer, J. Ullrich, R. Moshhammer, M. F. Kling, and B. Bergues, *New J. Phys.* **16** (2014). 45
- [137] H. J. Wörner and P. B. Corkum, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **44**, 041001 (2011). 46, 53
- [138] A. N. Pfeiffer, C. Cirelli, M. Smolarski, X. Wang, J. H. Eberly, R. Dörner, and U. Keller, *New J. Phys.* **13**, 093008 (2011). 46
- [139] P. Lan, Y. Zhou, A. N. Pfeiffer, Q. Zhang, P. Lu, and K. Midorikawa, *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **89**, 1 (2014). 46
- [140] Y. Zhou, M. Li, Y. Li, A. Tong, Q. Li, and P. Lu, *Opt. Express* **25**, 8450 (2017). 46
- [141] A. Emmanouilidou, A. Chen, C. Hofmann, U. Keller, and A. S. Landsman, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **48**, 245602 (2015). 46
- [142] L. Wolf, *Experimenteller Ansatz zum eindeutigen Nachweis korrelierter Ionisationsdynamik*, Bachelorarbeit, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2015. 47, 48, 49

- [143] A. S. Schlachter, P. J. Bjorkholm, D. H. Loyd, L. W. Anderson, and W. Haeberli, *Phys. Rev.* **177**, 184 (1969). 47, 48
- [144] G. Spiess, A. Valance, and P. Pradel, *Phys. Rev. A* **6**, 746 (1972). 47
- [145] A. Klose, K. Minamisono, C. Geppert, N. Frömmgen, M. Hammen, J. Krämer, A. Krieger, C. D. Levy, P. F. Mantica, W. Nörtershäuser, and S. Vinnikova, *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* **678**, 114 (2012). 47, 48
- [146] M. Bacal and W. Reichelt, *Rev. Sci. Instrum.* **45**, 769 (1974). 48
- [147] M. Hollstein, J. R. Sheridan, J. R. Peterson, and D. C. Lorents, *Phys. Rev.* **187**, 118 (1969). 51
- [148] H. B. van Linden van den Heuvell and H. G. Muller, No Title, in *Multiphot. Process.*, pages 25–34, Cambridge University Press, 1987. 52
- [149] M. S. Schöffler, X. Xie, P. Wustelt, M. Möller, S. Roither, D. Kartashov, A. M. Sayler, A. Baltuska, G. G. Paulus, and M. Kitzler, *Phys. Rev. A* **93**, 063421 (2016). 52, 54, 55, 57, 61
- [150] T. Rathje, N. G. Johnson, M. Möller, F. Süßmann, D. Adolph, M. Kübel, R. Kienberger, M. F. Kling, G. G. Paulus, and a. M. Sayler, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **45**, 074003 (2012). 52
- [151] S. Chelkowski, A. D. Bandrauk, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2355 (1990). 52
- [152] A. Natan, U. Lev, V. S. Prabhudesai, B. D. Bruner, D. Strasser, D. Schwalm, I. Ben-Itzhak, O. Heber, D. Zajfman, and Y. Silberberg, *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **86**, 1 (2012). 52
- [153] T. Nakajima, *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **75**, 1 (2007). 52
- [154] M. Krug, T. Bayer, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran, T. Baumert, S. S. Ivanov, and N. V. Vitanov, *New J. Phys.* **11** (2009). 52
- [155] V. Prasad, B. Dahiya, and K. Yamashita, *Phys. Scr.* **82**, 055302 (2010). 52
- [156] A. N. Pfeiffer, C. Cirelli, M. Smolarski, X. Wang, J. H. Eberly, R. Dörner, and U. Keller, *New J. Phys.* **13**, 093008 (2011). 52, 60
- [157] A. Pfeiffer, S. G. Sayres, and S. R. Leone, *Mol. Phys.* , 1 (2013). 53, 54
- [158] N. Rohringer and R. Santra, *Phys. Rev. A* **79**, 053402 (2009). 53
- [159] A. Emmanouilidou, A. Chen, C. Hofmann, U. Keller, and A. S. Landsman, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **48**, 245602 (2015). 53
- [160] A. Tong, Y. Zhou, and P. Lu, *Opt. Express* **23**, 15774 (2015). 53
- [161] A. S. Alnaser, X. Tong, T. Osipov, S. Voss, C. Maharjan, B. Shan, Z. Chang, and C. Cocke, *Phys. Rev. A* **70**, 023413 (2004). 54

- [162] M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2793 (1996). 58, 106
- [163] G. Tempea and T. Brabec, *Opt. Lett.* **23**, 1286 (1998). 58
- [164] J. Sung, J. Park, T. Imran, Y. Lee, and C. Nam, *Appl. Phys. B* **82**, 5 (2005). 58
- [165] T. Witting, F. Frank, W. A. Okell, C. A. Arrell, J. P. Marangos, and J. W. G. Tisch, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **45**, 74014 (2012). 58
- [166] T. R. Hogness and E. G. Lunn, *Phys. Rev.* **26**, 44 (1925). 65, 67, 70
- [167] K. E. Banyard and C. C. Baker, *Int. J. Quantum Chem.* **4**, 431 (1970). 66
- [168] I. Dabrowski and G. Herzberg, *Trans. N. Y. Acad. Sci.* **38**, 14 (1977). 66
- [169] G. J. Harris, A. E. Lynas-Gray, S. Miller, and J. Tennyson, *Astrophys. J.* **617**, L143 (2004). 66
- [170] E. A. Engel, N. Doss, G. J. Harris, and J. Tennyson, *Mon. Not. R. Astron. Soc.* **357**, 471 (2005). 66
- [171] Frankfurter Allgemeine Zeitung, HeH<sup>+</sup> ist nicht zu fassen, 2011. 66
- [172] E. Holzschuh, *Reports Prog. Phys.* **55**, 1035 (1992). 66
- [173] J. Fernández and F. Martín, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys* **40**, 2471 (2007). 66, 67
- [174] J. H. Posthumus, *Reports Prog. Phys.* **67**, 623 (2004). 66
- [175] D. Ursrey, F. Anis, and B. D. Esry, *Phys. Rev. A* **85**, 023429 (2012). 66, 67, 68, 69, 73, 75, 84, 92
- [176] D. Ursrey and B. D. Esry, *Phys. Rev. A* **96**, 063409 (2017). 66, 69, 92
- [177] G. L. Kamta and A. D. Bandrauk, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 1 (2005). 66
- [178] G. L. Kamta and A. D. Bandrauk, *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **76**, 1 (2007). 66
- [179] O. I. Tolstikhin, T. Morishita, and L. B. Madsen, *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **84**, 1 (2011). 66
- [180] L. X.-J. Xiao-Xin, Z. Song-Feng, and Zhou, *Commun. Theor. Phys.* **58**, 419 (2012). 66
- [181] E. Dehghanian, A. D. Bandrauk, and G. Lagmago Kamta, *J. Chem. Phys.* **139**, 084315 (2013). 66, 69, 79, 88, 90
- [182] S. Wang, J. Cai, and Y. Chen, *Phys. Rev. A* **96**, 43413 (2017). 66
- [183] Q. Liao, P. Lu, Q. Zhang, Z. Yang, and X. Wang, *Opt. Express* **16**, 17070 (2008). 66
- [184] Q. Liao and P. Lu, *Opt. Express* **17**, 15550 (2009). 66
- [185] A. Vilà, Z. Jinzhen, A. Scrinzi, and A. Emmanouilidou, (2017). 66
- [186] Z. Li, Q. Tang, and L. P. Zhang, *Comput. Oper. Res.* **79**, 78 (2017). 66

- [187] H. B. Pedersen, S. Altevogt, B. Jordon-Thaden, O. Heber, M. L. Rappaport, D. Schwalm, J. Ullrich, D. Zajfman, R. Treusch, N. Guerassimova, M. Martins, J.-T. Hoefft, M. Wellhöfer, and A. Wolf, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 223202 (2007). 67, 98
- [188] I. Dumitriu and A. Saenz, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **42**, 165101 (2009). 67
- [189] H. B. Pedersen, L. Lammich, C. Domesle, B. Jordon-Thaden, O. Heber, J. Ullrich, R. Treusch, N. Guerassimova, and A. Wolf, *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **82**, 1 (2010). 67, 72, 93
- [190] A. Wolf, H. B. Pedersen, L. Lammich, B. Jordon-Thaden, S. Altevogt, C. Domesle, U. Hergenhahn, M. Förstel, and O. Heber, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 194007 (2010). 67
- [191] W. Ketterle, H. Figger, and H. Walther, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2941 (1985). 67, 88
- [192] W.-C. Tung, M. Pavanello, and L. Adamowicz, *J. Chem. Phys.* **137**, 164305 (2012). 67, 83
- [193] M. Stanke, D. Kedziera, M. Molski, S. Bubin, M. Barysz, and L. Adamowicz, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 7 (2006). 67, 76
- [194] J. Loreau, J. Liévin, P. Palmeri, P. Quinet, and N. Vaeck, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 065101 (2010). 67, 68, 69, 97
- [195] R. Trebino and D. J. Kane, *J. Opt. Soc. Am. A* **10**, 1101 (1993). 72
- [196] J. Loreau, J. Lecointre, X. Urbain, and N. Vaeck, *Phys. Rev. A* **84**, 053412 (2011). 75, 88, 98
- [197] A. Saenz, *Phys. Rev. A* **66**, 063407 (2002). 78
- [198] E. Goll, G. Wunner, and A. Saenz, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 103003 (2006). 78, 88
- [199] W. Y. Li, S. J. Yu, S. Wang, and Y. J. Chen, *Phys. Rev. A* **94**, 053407 (2016). 79
- [200] Z. Wang, M. Li, Y. Zhou, P. Lan, and P. Lu, *Sci. Rep.* **7**, 42585 (2017). 80
- [201] O. I. Tolstikhin, H. J. Wörner, and T. Morishita, *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **87**, 4 (2013). 80
- [202] A. M. Sayler, J. McKenna, B. Gaire, N. G. Kling, K. D. Carnes, B. D. Esry, and I. Ben-Itzhak, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **47**, 031001 (2014). 80
- [203] X. Wang, H. Xu, A. Atia-Tul-Noor, B. T. Hu, D. Kielpinski, R. T. Sang, and I. V. Litvinyuk, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 1 (2016). 80
- [204] S. Adee, *Physics Projects Deflate for Lack of Helium-3*, 2010. 80
- [205] J. McKenna, A. M. Sayler, B. Gaire, N. G. Johnson, M. Zohrabi, K. D. Carnes, B. D. Esry, and I. Ben-Itzhak, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **42**, 121003 (2009). 81
- [206] A. M. Sayler, J. McKenna, B. Gaire, N. G. Kling, K. D. Carnes, and I. Ben-Itzhak, *Phys. Rev. A* **86**, 033425 (2012). 81, 83

- [207] M. Wang, G. Audi, A. Wapstra, F. Kondev, M. MacCormick, X. Xu, and B. Pfeiffer, *Chinese Phys. C* **36**, 1603 (2012). 82
- [208] L. Yue, P. Wustelt, A. M. Sayler, G. G. Paulus, and S. Gräfe, arXiv , 1807.00779 (2018). 88
- [209] O. I. Tolstikhin, L. B. Madsen, and T. Morishita, *Phys. Rev. A* **89**, 013421 (2014). 88
- [210] L. Yue, S. Bauch, and L. B. Madsen, *Phys. Rev. A* **96**, 043408 (2017). 88
- [211] H. Li, X. Gong, K. Lin, R. De Vivie-Riedle, X. M. Tong, J. Wu, and M. F. Kling, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **50** (2017). 93
- [212] D. Zajfman, O. Heber, L. Vejby-Christensen, I. Ben-Itzhak, M. Rappaport, R. Fishman, and M. Dahan, *Phys. Rev. A* **55**, R1577 (1997). 93
- [213] V. P. Shevelko and A. Vinogradov, *Phys. Scr.* **275** (1979). 95
- [214] C. Z. Bisgaard and L. B. Madsen, *Am. J. Phys.* **72**, 249 (2004). 96
- [215] M. Feit, J. Fleck, and A. Steiger, *J. Comput. Phys.* **47**, 412 (1982). 97
- [216] P. F. Moulton, *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 125 (1986). 99
- [217] D. Spence, P. Kean, and W. Sibbett, *Opt. Lett.* **16**, 42 (1991). 99
- [218] D. Strickland and G. Mourou, *Opt. Commun.* **55**, 447 (1985). 99
- [219] G. Cheriaux, B. Walker, L. F. Dimauro, P. Rousseau, F. Salin, and J. P. Chambaret, *Opt. Lett.* **21**, 414 (1996). 99
- [220] Fastlite, *Dazzler HR 1550*, 2016. 100, 101
- [221] LIGHT CONVERSION, *HE-TOPAS-C*, Manual. 100
- [222] P. Tournois, *Opt. Commun.* **140**, 245 (1997). 101
- [223] A. M. Weiner, *Opt. Commun.* **284**, 3669 (2011). 101
- [224] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, C. Spielmann, and P. Tournois, *Opt. Lett.* **25**, 575 (2000). 101
- [225] J. P. Zhou, C. P. Huang, C. Y. Shi, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Opt. Lett.* **19**, 126 (1994). 103
- [226] C. P. J. Barty, G. Korn, F. Raksi, A.-C. Tien, K. R. Wilson, V. V. Yakovlev, C. Rose-Petruck, J. Squier, and K. Yamakawa, *Opt. Lett.* **21**, 219 (1996). 105
- [227] T. Brabec and F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000). 105
- [228] G. Sansone, L. Poletto, and M. Nisoli, *Nat. Photonics* **5**, 655 (2011). 105
- [229] T. Rathje, N. G. Johnson, M. Möller, F. Süßmann, D. Adolph, M. Kübel, R. Kienberger, M. F. Kling, G. G. Paulus, and a. M. Sayler, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **45**, 074003 (2012). 106

- 
- [230] S. Bohman, A. Suda, T. Kanai, S. Yamaguchi, and K. Midorikawa, *Opt. Lett.* **35**, 1887 (2010). 106, 110
- [231] T. Nagy, M. Forster, and P. Simon, *Appl. Opt.* **47**, 3264 (2008). 106
- [232] A. Klenke, M. Kienel, T. Eidam, S. Hädrich, J. Limpert, and A. Tünnermann, *Opt. Lett.* **38**, 4593 (2013). 106, 107
- [233] J. Limpert, A. Klenke, M. Kienel, S. Breilkopf, T. Eidam, S. Hädrich, C. Jauregui, and A. Tünnermann, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **20**, 1 (2014). 106
- [234] D. Wang, Y. Leng, and Z. Huang, *J. Opt. Soc. Am. B* **31**, 1248 (2014). 107
- [235] Y. Zhang, *Coherent Combining of Few-cycle Pulses through a Temporally Divided Hollow Fiber Compressor and Filamentation*, Master thesis, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2016. 107
- [236] M. Kienel, A. Klenke, T. Eidam, S. Hädrich, J. Limpert, and A. Tünnermann, *Opt. Lett.* **39**, 1049 (2014). 108
- [237] T. Hansch and B. Couillaud, *Opt. Commun.* **35**, 3 (1980). 108

# Publikationen

*Coherent Control at Its Most Fundamental: Carrier-Envelope-Phase-Dependent Electron Localization in Photodissociation of a  $H_2^+$  Molecular Ion Beam Target*

T. Rathje, A. M. Sayler, S. Zeng, **P. Wustelt**, H. Figger, B. D. Esry and G. G. Paulus, *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, **111**, 093002 (2013)

*Momentum resolved study of the saturation intensity in multiple ionization*

**P. Wustelt**, M. Möller, T. Rathje, A. M. Sayler, T. Stöhlker and G. G. Paulus, *PHYSICAL REVIEW A*, **91**, 031401(R) (2015) - Editors' Suggestion

*Laser-subcycle control of sequential double-ionization dynamics of helium*

M. S. Schöffler, X. Xie, **P. Wustelt**, M. Möller, S. Roither, D. Kartashov, A. M. Sayler, A. Baltuska, G. G. Paulus and M. Kitzler, *PHYSICAL REVIEW A*, **93**, 063421 (2016) - Editors' Suggestion

*Numerical investigation of the sequential-double-ionization dynamics of helium in different few-cycle-laser-field shapes*

**P. Wustelt**, M. Möller, M. S. Schöffler, X. Xie, V. Hanus, A. M. Sayler, A. Baltuska, G. G. Paulus and M. Kitzler, *PHYSICAL REVIEW A*, **95**, 023411 (2017)

*Single-shot, real-time carrier-envelope phase measurement and tagging based on stereographic above-threshold ionization at short-wave infrared wavelengths*

Yinyu Zhang, Philipp Kellner, Daniel Adolph, Danilo Zille, **Philipp Wustelt**, Daniel Würzler, Slawomir Skruszewicz, Max Möller, A. Max Sayler, and Gerhard G. Paulus, *OPTICS LETTERS*, **72**, 5150-5153 (2017)

*Heteronuclear Limit of Strong-Field Ionization: Fragmentation of  $HeH^+$  by Intense Ultrashort Laser Pulses*

**P. Wustelt**, F. Oppermann, L. Yue, M. Möller, T. Stöhlker, S. Gräfe, M. Lein, G. G. Paulus and A. M. Sayler, *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, **121**, 073203 (2018)

*Strong-Field Polarizability-Enhanced Dissociative Ionization*

L. Yue, **P. Wustelt**, A. M. Sayler, F. Oppermann, M. Lein, G. G. Paulus and S. Gräfe, *PHYSICAL REVIEW A*, **98**, 043418 (2018)

# Konferenzbeiträge

DPG-Frühjahrstagung Berlin 2014

*Strong-field Ionization of Atomic Ions* (Vortrag)

Gordon Research Conference on Multiphoton Processes Boston 2014

*Strong-field Ionization of Atomic Ions* (Poster)

DPG-Frühjahrstagung Heidelberg 2015

*Momentum resolved study of the saturation intensity in multiple ionization* (Vortrag)

International Conference on Correlation Effects in Radiation Fields Rostock September 2015

*Momentum resolved study of the saturation intensity in multiple ionization* (Vortrag)

DPG-Frühjahrstagung Hannover 2016

*Novel experimental approach for the detection of correlated ionization dynamics* (Vortrag)

Annual Meeting of the DFG Priority Programme QUTIF Jena/Dornburg Mai 2016

*The  $HeH^+$  isotopologues in intense asymmetric waveforms* (Poster)

QUTIF Young Researcher Meeting at Mariaspring (Göttingen) Dezember 2016

*Laser-subcycle control of sequential double-ionization dynamics of Helium* (Vortrag)

International Focus Workshop with Annual Meeting of the DFG Priority Programme QUTIF

Dresden Februar 2017

*Fragmentation Dynamics of  $HeH^+$*  (Poster)

DPG-Frühjahrstagung Mainz 2017

*Laser-subcycle control of sequential double-ionization dynamics of Helium* (Vortrag)

International Workshop on Atomic Physics (atom 2017), Dresden November 2017

*Ionization of  $He^+$*  (Vortrag)

QUTIF Annual Meeting, Center for Free-Electron Laser Science (CFEL), Hamburg 2018

*Fragmentation dynamics of  $HeH^+$  in ultrashort intense laser fields* (Vortrag)

DPG-Frühjahrstagung Erlangen 2018

*Fragmentation dynamics of  $HeH^+$  in intense ultrashort laser pulses* (Vortrag)

International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (ISUILS) Visegrád 2018

*Heteronuclear Limit of Strong-Field Ionization: Fragmentation of  $HeH^+$  by Intense Ultrashort Laser Pulses* (Poster)

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all jenen danken, die durch ihre fachliche und persönliche Unterstützung zum Gelingen dieser Doktorarbeit beigetragen haben.

Besonders danke ich Prof. Dr. Gerhard Paulus für die Möglichkeit, diese Arbeit am Institut für Optik und Quantenelektronik in Jena durchführen zu können, und für die Unterstützung meiner Promotion mit zahlreichen Ideen und Anregungen.

Des Weiteren möchte ich mich bedanken bei:

- Tim Rathje für die Einführung in die Tücken der Ionenstrahlexperimente.
- Max Möller für die vielen Anregungen und motivierenden Diskussionen über alle möglichen Aspekte der Starkfeld- und Laserphysik und für die gemeinsame Zeit, die wir mit dem Laser und den Experimenten verbracht haben.
- A. Max Sayler for teaching me all important experimental and theoretical aspects of molecular fragmentation measurements.
- Lun Yue und Florian Oppermann sowie Prof. Stefanie Gräfe und Prof. Manfred Lein für die Erstellung der Simulationen für das  $\text{HeH}^+$ -Molekül und die zahlreichen und aufschlussreichen Diskussionen.
- Hongcheng Ni für die Durchführung der TDSE-Simulationen für  $\text{He}^+$  in elliptisch polarisierten Laserfeldern und die Beantwortung zahlreicher Fragen.
- Thomas Weber für die Unterstützung bei der Konstruktion und dem Aufbau der Experimente.
- Yinyu Zhang, Lukas Wolf, Sebastian Linz, Daniel Adolph, Dominik Hoff, Daniel Würzler und Slawomir Skruszewicz für die angenehme Zusammenarbeit im NLO-Labor.
- sowie allen Kollegen in der Arbeitsgruppe Nichtlineare Optik und den Mitarbeitern der Werkstätten der Physikalischen Fakultät.

Abschließend gilt meine große Dankbarkeit meiner Mutter und meiner Freundin, Carolin, die mich zu jedem Zeitpunkt meines Studiums und der Promotion ermutigt und mir stets Rückhalt gegeben haben.

# Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Die in dieser Arbeit beschriebene Forschungsarbeit und Auswahl der Schwerpunkte fand in enger Zusammenarbeit mit meinem betreuenden Hochschullehrer Prof. Dr. G. G. Paulus statt.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Physikalisch-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt.

Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen und Gewissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Ort, Datum

Unterschrift des Verfassers