

# Ionisation in Zwei-Farben-Laserfeldern: Steuerung von Elektronenwellenpaketen

## **Dissertation**

zur Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik  
der Johann Wolfgang Goethe-Universität  
in Frankfurt am Main

von

**Martin Clemens Richter**  
aus Dresden

Frankfurt (2016)  
(D30)

vom Fachbereich Physik der

Johann Wolfgang Goethe - Universität als Dissertation angenommen.

Dekan: Prof. Dr. Rene Reifarth

Gutachter: Prof. Dr. Reinhard Dörner

PD. Dr. Till Jahnke

Datum der Disputation:

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Atome in starken Laserfeldern</b>	<b>6</b>
2.1	Ponderomotorisches Potential . . . . .	6
2.2	Multiphotonenionisation . . . . .	7
2.3	Tunnelionisation . . . . .	8
2.3.1	Elektroneninterferenz . . . . .	11
2.3.2	Elektronentrajektorien . . . . .	12
2.3.3	Photoelektronenenergiespektrum . . . . .	14
2.4	Keldysh Parameter . . . . .	14
2.5	Feldgeometrien . . . . .	15
2.5.1	Linear polarisiertes Licht . . . . .	15
2.5.2	Orthogonal polarisierte Zwei-Farben-Felder . . . . .	16
2.5.3	Entgegengesetzt zirkular polarisierte Zwei-Farben-Felder . . . . .	17
<b>3</b>	<b>Experiment</b>	<b>19</b>
3.1	Lasersystem . . . . .	19
3.2	COLTRIMS . . . . .	21
3.2.1	Kammer . . . . .	21
3.2.2	Präparation des Targets . . . . .	22
3.2.3	Spektrometer . . . . .	24
3.2.4	Detektoren . . . . .	25
3.2.5	Signalverarbeitung . . . . .	27
3.3	Datenanalyse . . . . .	28
3.3.1	Rekonstruktion der Koordinaten . . . . .	29
3.3.2	Berechnung der Impulse . . . . .	31
3.3.3	Kalibrierung . . . . .	33
3.4	Orthogonal Two-Color (OTC) . . . . .	38
3.5	Counter-rotating two-color (CRTC) . . . . .	40
<b>4</b>	<b>Simulation der Tunnelionisation</b>	<b>42</b>
4.1	Anfangsbedingungen . . . . .	43
4.2	Propagation . . . . .	43

---

4.3	Phase . . . . .	46
<b>5</b>	<b>Doppelt angeregte Zustände in starken Laserfeldern</b>	<b>49</b>
5.1	Rydbergzustände . . . . .	50
5.2	Doppelanregung und Autoionisation . . . . .	52
<b>6</b>	<b>Zero Kinetic Energy Structure</b>	<b>59</b>
6.1	Entstehung des ZEP . . . . .	61
6.2	Genauigkeit . . . . .	63
6.3	Zusammenfassung . . . . .	65
<b>7</b>	<b>Schaltbare Doppelspaltinterferenz</b>	<b>66</b>
7.1	Interferenzen im Photoelektronenimpulsspektrum . . . . .	66
7.1.1	ATI-Struktur . . . . .	67
7.1.2	Elektronenholographie . . . . .	70
7.1.3	Intracycle . . . . .	73
7.2	Intracycle-Interferenzkanal im OTC-Feld . . . . .	74
7.3	Phase und Intensität des OTC-Feldes . . . . .	83
7.3.1	Phasenkorrektur . . . . .	83
7.3.2	Bestimmung der absoluten Phase . . . . .	84
7.3.3	Intensitätsbestimmung . . . . .	85
<b>8</b>	<b>Coulomb-Fokussierung</b>	<b>87</b>
8.1	Experimentelle Beobachtung . . . . .	88
8.2	Coulomb-freier Fall . . . . .	91
8.3	Coulomb-Fall . . . . .	92
8.4	Zusammenfassung . . . . .	99
<b>9</b>	<b>Ionisation mit Counter-Rotating Two Color Laserfeldern</b>	<b>100</b>
9.1	Phasenkorrektur . . . . .	101
9.2	Intensitätsbestimmung . . . . .	103
9.3	CRTC Elektronenimpulsverteilungen . . . . .	107
9.3.1	Zentraler Peak . . . . .	109
9.3.2	Interferenzen . . . . .	110
9.3.3	Coulomb-Effekt: Spirale . . . . .	111
9.3.4	Phasenabhängigkeit bei $I_{780nm}/I_{390nm}$ 3:1 . . . . .	113
9.4	Anwendungsmöglichkeiten . . . . .	115
9.4.1	Intracycle-Interferenzen . . . . .	115
9.4.2	Rückstreuende Elektronen . . . . .	117
<b>10</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>122</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Licht ist ein wichtiges Werkzeug zur Beobachtung und Manipulation der mikroskopischen Welt, da das elektromagnetische Feld des Lichts Kräfte ausübt, die sehr gut kontrollierbar sind. Mit Licht in Form von starken, ultrakurzen ( $\sim 40$  fs) Laserpulsen können Atome ionisiert werden. Die Dauer dieser Femtosekundenlaserpulse lässt sich durch den Vergleich

$$\frac{1\text{Femtosekunde}}{\text{Sekunde}} \simeq \frac{8\text{Minuten}}{\text{Alter des Universums}} \quad (1.1)$$

erfassen. Die elektrische Feldstärke eines Laserpulses wird als stark bezeichnet, wenn sie in derselben Größenordnung ist, wie jene am Ort eines gebundenen Elektrons. Ein Beispiel für eine solche elektrische Feldstärke  $E_B$  ist die, die ein Proton eines Wasserstoffatoms am Ort des Elektrons erzeugt. Bei Verwendung des Bohrschen Radius  $r_B = 0,53 \cdot 10^{-10}m$  beträgt sie

$$E_B = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e}{r_B^2} = 5,14 \cdot 10^{11}\text{V/m}. \quad (1.2)$$

Diese elektrische Feldstärke  $E_B$  kann direkt mit der eines Laserpulses verglichen werden und sie entspricht einer Intensität des Laserpulses von  $I = 3,5 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$ .

Da solche ultrakurzen und intensiven Laserfelder direkt an die Elektronen koppeln, können in Experimenten durch den stark nichtlinearen Prozess der Tunnelionisation von Atomen kohärente Elektronenwellenpakete erzeugt werden, welche von den gemeinsamen Kräften des elektrischen Laserfeldes und des ionischen Coulomb-Potentials getrieben werden. Diese Experimente offenbarten innerhalb der letzten 25 Jahre eine Vielzahl an fundamental wichtigen Phänomenen, wie neue Elektroneninterferenzkanäle und Effekte durch die Wechselwirkung der vom Laserfeld getriebenen Elektronen mit dem ionischen Potential.

Durch aktives Formen des elektrischen Feldes des Laserpulses mittels zweier Farben, wird die Kontrolle über die Bewegung der Elektronenwellenpakete möglich. Die große Vielfalt an kontrollierbaren Freiheitsgraden eines Zwei-Farben-Feldes, bestehend aus

- Relative Phase
- Relative Feldstärken

- Elliptizität Farbe A
- Elliptizität Farbe B
- Winkel zwischen den Hauptachsen der beiden Polarisationsellipsen,

führt zu einer maßgeblichen Erweiterung der Manipulationsmöglichkeiten von Elektronenwellenpaketen und der gezielten Untersuchung physikalischer Effekte. Die der Beobachtung dieser Effekte im Rahmen dieser Arbeit zugrundeliegende Messgröße stellen die Impulsvektoren der Fragmente nach der Ionisation der Atome dar. Die dreidimensionalen Elektronenimpulse werden in Koinzidenz mit dem entsprechenden Mutterion mit der „COLD Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy“ (COLTRIMS) - Methode aufgezeichnet.

Vor diesem Hintergrund ist es das Ziel dieser Arbeit, Elektronenwellenpakete durch aktiv geformte elektrische Laserfelder zu steuern und die dabei auftretenden physikalischen Effekte zu studieren. Dabei werden im Laufe dieser Arbeit Elektronenimpulsverteilungen mit Schritt für Schritt wachsender Komplexität der ionisierenden Laserfelder untersucht.

Unter Verwendung von Laserpulsen mit nur einer Farbe und linearer Polarisation wurden doppelt angeregte Zustände durch den Einfang des durch das Laserfeld zurückgetriebenen Elektrons erzeugt (Kapitel 5). Die Signatur der Abregung dieser so populierte Rydbergzustände sind Peaks in der Elektronenenergieverteilung bei niedrigen Energien. Eine weitere Überraschung bei der in diesem Experiment besonders hochauflösenden Impulsspektroskopie mit linear polarisiertem Licht war das Auftreten eines prominenten Peaks, der außer in einer der drei Impulskomponenten den Impuls null aufwies (Kapitel 6). Simulationen zeigten, dass bei der Ionisation nicht nur das Laserfeld eine Rolle spielen kann, sondern auch das im Vergleich sehr kleine konstante elektrische Feld des im experimentellen Aufbau verwendeten Spektrometers.

Die nächste Stufe der Komplexität der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Laserfelder stellt das „Orthogonal Two-Color“ (OTC) - Feld dar. Es besteht aus zwei linear und senkrecht zueinander polarisierten Laserpulsen zweier Frequenzen: der Grundfrequenz und ihrer zweiten Harmonischen. Das Feld der zweiten Harmonischen wurde dabei so schwach gewählt, dass es zwar kaum zur Ionisation beitrug, jedoch die Elektronen nach der Ionisation entsprechend der kontrollierbaren Phase zwischen den beiden Farben ablenken konnte. Mit dieser Feldkonfiguration war es möglich, einen bisher kaum erforschten Interferenzkanal, die „Intracycle“-Interferenz, deutlich im Elektronenimpulsspektrum sichtbar zu machen und ihn außerdem durch Variieren der Phase ein- und auszuschalten (Kapitel 7). In den gleichen Messdaten konnte zusätzlich erstmals der bekannte Effekt der Coulomb-Fokussierung im OTC-Feld untersucht werden (Kapitel 8).

Der allgemeinste Fall eines Zwei-Farben-Feldes besteht aus beliebig elliptisch polarisierten Laserpulsen mit den bereits beschriebenen kontrollierbaren Parametern. Erstmals wurden dreidimensionale Elektronenimpulsverteilungen am konkreten Beispiel eines Laserpulses mit zwei entgegengesetzt zirkular polarisierten zwei Farben bei variablen Intensitäten aufgezeichnet und auf die Besonderheiten der resultierenden Elektronenimpulsverteilungen eingegangen (Kapitel 9).

Um ein Verständnis sowohl für die Dynamik als auch der Interferenzen der ionisierten

Elektronen im kombinierten Laser- und Coulomb-Feld zu erhalten, wurde eine semiklassische Simulation entwickelt (Kapitel 4). Mit dieser konnten die beschriebenen Effekte bei Verwendung der komplexeren Laserfelder erklärt und Vorhersagen für zukünftige Experimente getroffen werden.

# Kapitel 2

## Atome in starken Laserfeldern

In starken Laserfeldern ist die Ionisation von Atomen möglich, auch wenn die Energie der Photonen des Laserfeldes geringer als das Ionisationspotential des zu ionisierenden Atoms ist. Bei vergleichsweise niedrigen Intensitäten und kurzen Wellenlängen wird die Ionisation durch die Multiphotonenionisation beschrieben. Hierbei werden bei hohen Laserintensitäten mehrere Photonen gleichzeitig absorbiert, wodurch die zur Ionisation zur Verfügung stehende Energie die Summenenergie der einzelnen Photonen ist. Es können auch mehrere Photonen über die Ionisationsschwelle hinaus absorbiert werden, was als „Above-Threshold-Ionization“ (ATI) bezeichnet wird. Bei noch höheren Intensitäten und größeren Wellenlängen wird die Ionisation über den Prozess der Tunnelionisation beschrieben, bei dem das atomare Potential durch das elektrische Laserfeld so sehr gestört wird, dass Elektronenwellenpakete durch die Potentialbarriere entkommen können. Obwohl das Tunneln ein reines Quantenphänomen ist, kann die Elektronenbewegung danach durch einzelne, sich ausbreitende Trajektorien genähert werden. Im einfachsten Fall können die Trajektorien durch das Simple-Man-Modell [1] beschrieben werden, in welchem der Driftimpuls eines Elektrons von der Phase, bei der es getunnelt ist, abhängt. Mittels des Keldysh-Parameters  $\gamma = \sqrt{I_p/2U_p}$ , mit  $I_p$  als Ionisationspotential und  $U_p$  als ponderomotorische Energie, kann bestimmt werden, ob eher das Modell der Multiphotonenionisation oder das der Tunnelionisation zutreffend ist. In diesem Kapitel werden einige der Grundbegriffe der Starkfeldionisation näher beschrieben. Außerdem werden verschiedene Feldformen eingeführt, deren Besonderheiten im Ergebniskapitel detailliert erläutert werden.

### 2.1 Ponderomotorisches Potential

Die klassische Bewegungsgleichung eines freien Elektrons, das ohne Anfangsgeschwindigkeit am Ort  $x = 0$  startet mit der Masse  $m_e$  in einem linearen Laserfeld mit der Amplitude  $E_0$  lautet [2]

$$m_e \frac{d\dot{x}(t)}{dt} = e_0 E_0 \cos \omega t. \quad (2.1)$$



Die Geschwindigkeit des Elektrons ist somit

$$\dot{x}(t) = \frac{e_0 E_0}{m_e \omega} \sin \omega t, \quad (2.2)$$

und somit seine kinetische Energie

$$\frac{1}{2} m_e \dot{x}(t)^2 = \frac{e_0^2 E_0^2}{2 m_e \omega^2} \sin^2 \omega t. \quad (2.3)$$

Bei Betrachtung der Auslenkung

$$x(t) = -\frac{e_0 E_0}{\omega^2 m_e} \cos \omega t \quad (2.4)$$

ist festzustellen, dass das Elektron eine Zitterbewegung im elektrischen Feld durchführt. Die Größe der Zitterenergie, also die gemittelte kinetische Energie eines freien Elektrons im elektrischen Feld, wird als ponderomotorische Energie  $U_p$  bezeichnet:

$$U_p := \frac{1}{2} m_e \langle \dot{x}(t)^2 \rangle = \frac{e^2 E_0^2}{4 m_e \omega^2} = \frac{e^2 I \lambda^2}{8 \pi^2 \epsilon_0 c^3 m_e} \quad (2.5)$$

Ein typischer Wert von  $U_p$  für die in diesem Experiment verwendeten Parameter  $\lambda = 780 \text{ nm}$  und  $I = 1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ist  $U_p = 8 \text{ eV}$ .

Der Zusammenhang 2.1 kann für elliptische Polarisation durch

$$E(t) = \frac{E_0}{\sqrt{1 + \chi^2}} \begin{pmatrix} \sin(\omega t) \\ \cos(\omega t) \end{pmatrix} \quad (2.6)$$

erweitert werden [3]. Die Energie der nicht mit dem Coulomb-Potential wechselwirkenden Elektronen  $E_{elec}$  ist dann in Abhängigkeit der Elliptizität gegeben durch

$$E_{elec} = \frac{1}{2} m \langle \dot{x}(t)^2 \rangle = \frac{2U_p}{1 + \chi^2} (\cos^2(\omega t) + \chi \sin^2(\omega t)). \quad (2.7)$$

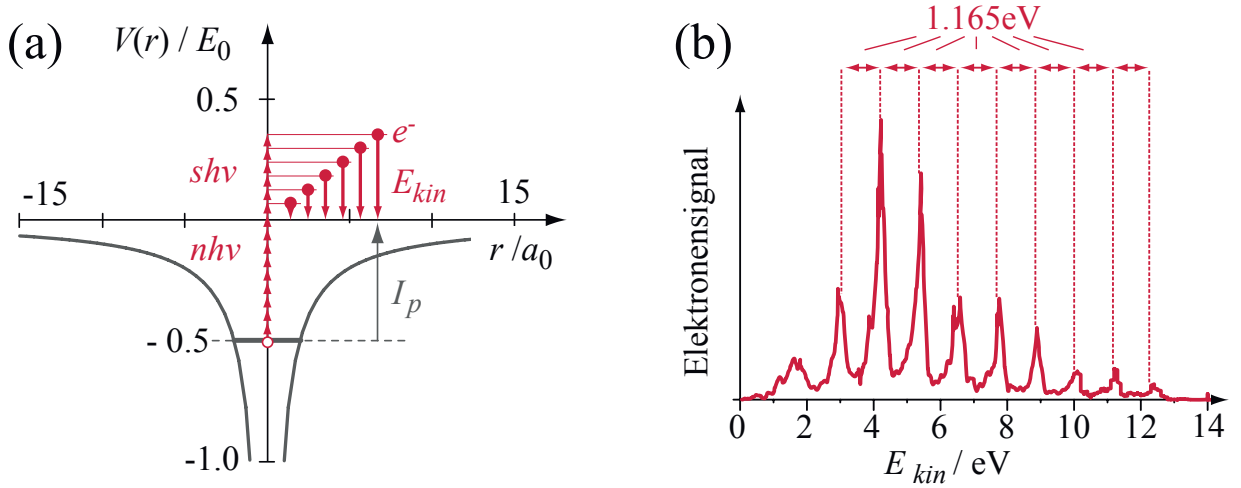
Für lineare Polarisation ( $\chi = 0$ ) ist damit die maximale Energie dieser Elektronen  $2U_p$ . Für zirkulare Polarisation ( $\chi = \pm 1$ ) ergibt sich eine konstante Energie von  $1U_p$ .

## 2.2 Multiphotonenionisation

Wenn Atome oder Moleküle Licht mit sehr hohen Intensitäten ausgesetzt werden, können sie mehrere Lichtquanten (Photonen) gleichzeitig absorbieren. So können Elektronen das Atom verlassen, obwohl die Energie eines einzelnen Photons nicht zur Ionisation ausreichen würde. Die Wahrscheinlichkeit eines Multiphotonenprozesses, bei dem  $n$  Photonen absorbiert werden, ist gegeben durch [2]

$$\omega_n \propto I^n. \quad (2.8)$$

Wie in Abb. 2.1(a) zu sehen, werden auch Photonen über die Ionisationsschwelle hinaus absorbiert. Bei dieser sogenannten „Above Threshold Ionization“ (ATI) geht die Energie der über der Schwelle absorbierten Photonen in kinetische Energie  $E_{kin}$  der Elektronen über, weshalb das Photoelektronenenergiespektrum diskrete Peaks im Abstand von einer Photonenergie  $E = h\nu$  aufweist (Abb. 2.1(b)).



**Abbildung 2.1:** Prinzip der Multiphotonenionisation: In (a) sind die Elektronen zunächst in einem Potential der Tiefe  $I_p$  gebunden. Wegen der hohen Photonendichte bei hohen Laserintensitäten können mehrere Photonen  $n$  der Energie  $E_\gamma < I_p$  gleichzeitig absorbiert werden. Außerdem ist eine Absorption weiterer Photonen  $s$  über die Ionisationsschwelle hinaus (ATI) möglich. (b) Diskretes Energiespektrum der Photoelektronen von Xe von einer Messung mit einer Wellenlänge  $\lambda = 1064$  nm und  $I = 1,1 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> [4]. Bild entnommen aus [2].

Da sich das Ionisationspotential  $I_p$  durch Starkverschiebung um  $U_p$  erhöht, lautet bei der ATI die Energiebilanz für kurze Pulse, bei denen das Elektron während des Pulses den Fokus nicht verlässt,

$$E_{kin} = nh\nu - (I_p + U_p), \quad (2.9)$$

wobei  $n$  die Anzahl der absorbierten Photonen darstellt. Für lange Pulse gewinnt das Elektron beim Verlassen des Fokus die Energie  $U_p$  zurück.

## 2.3 Tunnelionisation

Ab Intensitäten von etwa  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ist das elektrische Feld des Lasers stark genug, um das atomare Potential so stark zu verbiegen, dass die im Atom gebundenen Elektronen eine gewisse Tunnelwahrscheinlichkeit haben. Die Beschreibung der Ionisationsrate, des Orts des Tunnelausgangs und der Endimpulsverteilung der Photoelektronen wird durch die Ammosov-Delone-Krainov (ADK) Theorie [5] vorgenommen. Die Ionisationsrate

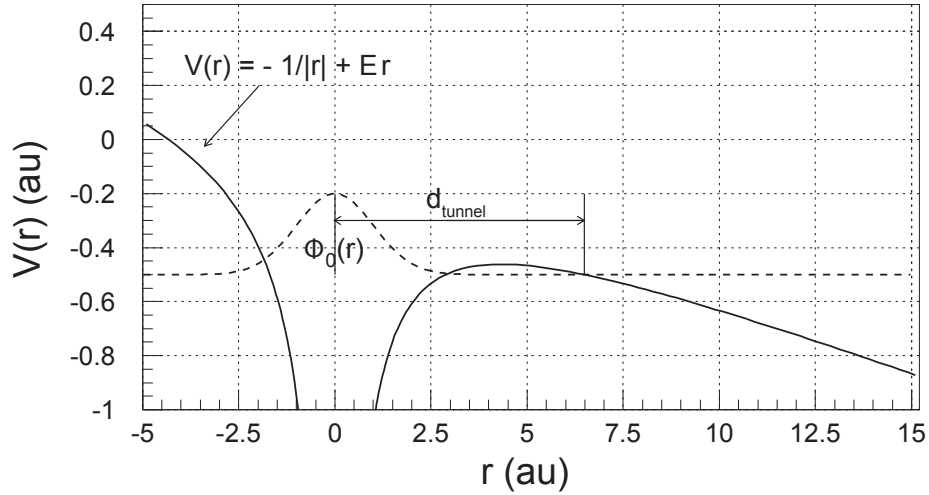
(1/(1au Zeit))  $w_{ADK}$  für linear polarisiertes Licht ist durch

$$w_{ADK} = \sqrt{\frac{3Eg^3}{\pi Z^3} \frac{ED^2}{8\pi Z}} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3g^3E}\right) \quad (2.10)$$

gegeben [6], wobei E die elektrische Feldstärke und D und g die Abkürzungen

$$D = \left(\frac{4eZ^3}{Eg^4}\right)^g, \quad g = \frac{Z}{\sqrt{2I_p}}, \quad (2.11)$$

mit  $e \approx 2.72$  als eulersche Zahl, sind. Der Abstand des Elektrons vom Atom  $d_{tunnel}$  beim Tunneln lässt sich mittels der Breite der Potentialbarriere nähern Abb. 2.2 [7]

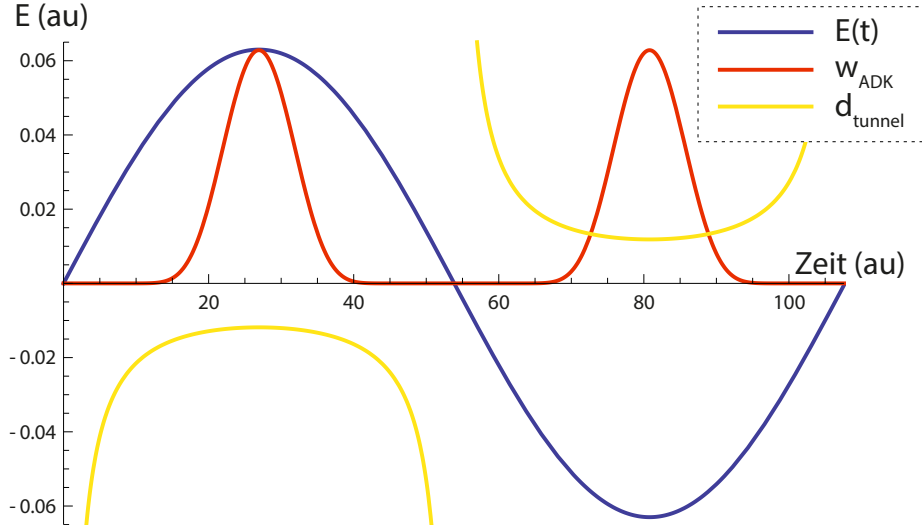


**Abbildung 2.2:** Durch die Einwirkung des Laserfelds wird die Barriere des atomaren Potentials so schmal, dass ein messbarer Anteil der Elektronen durch sie hindurchdringen (tunneln) kann. Die so ionisierten Elektronen haben nach der ADK-Theorie keinen Anfangsimpuls in Polarisationsrichtung. Abbildung entnommen aus [7].

und ist durch

$$d_{tunnel} \approx -1,65 \frac{I_p}{2E} \quad (2.12)$$

gegeben. In Abb. 2.3 sind die normierten ADK-Raten  $w_{ADK}$  und Tunnelabstände  $d_{tunnel}$  für ein elektrisches Feld mit  $\lambda=780$  nm und  $I=1,4 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> dargestellt.



**Abbildung 2.3:** Das elektrische Feld in Abhängigkeit der Zeit ist die blaue Kurve. Der dazugehörige Verlauf der normierten Ionisationswahrscheinlichkeit (rot) zeigt, dass nur innerhalb eines schmalen Bereichs um das Feldmaximum herum eine signifikante Tunnelwahrscheinlichkeit besteht. Der normierte Tunnelabstand (gelb) ist abhängig von der Richtung des Feldes und wird betragsmäßig kleiner, je höher das elektrische Feld ist.

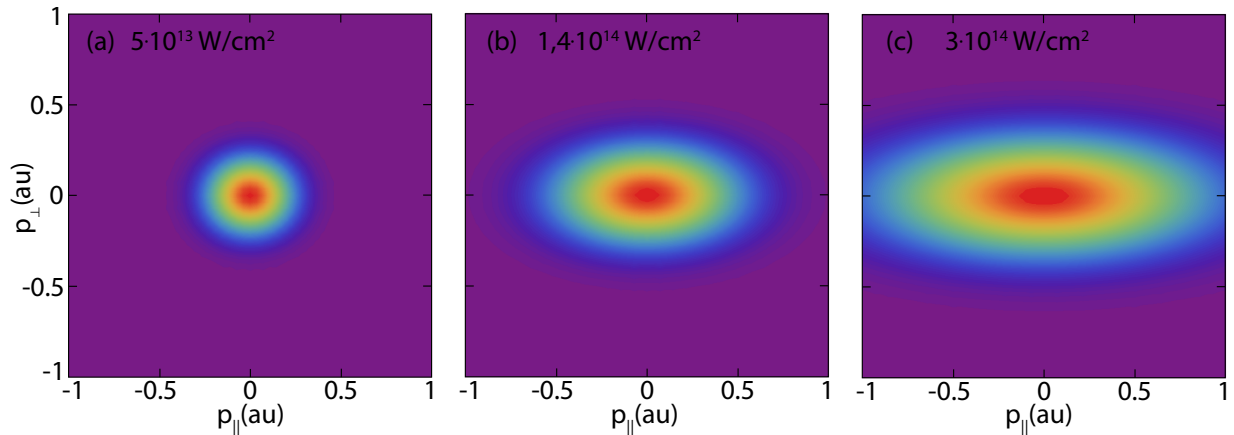
Auch die Endimpulsverteilung der Photoelektronen ist durch die ADK-Theorie beschrieben. Für die Richtung parallel zur Polarisationsrichtung des Laserfeldes wird angenommen, dass die Elektronen direkt nach dem Tunneln einen Impuls von null haben. Sie erhalten ihren Endimpuls durch eine Beschleunigung im Laserfeld. Die parallele  $p_{\parallel}$  und senkrechte  $p_{\perp}$  Endimpulsverteilung ist gegeben durch

$$w(p_{\parallel}, p_{\perp}) = w_0 \exp\left(-\frac{p_{\parallel}^2 \omega^2 (2I_p)^{3/2}}{3F^3} - \frac{p_{\perp}^2 (2I_p)^{1/2}}{F}\right), \quad (2.13)$$

mit

$$w(0) = \frac{p\omega^2 D^2}{8\pi^3 gF} \exp\left(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3F}\right). \quad (2.14)$$

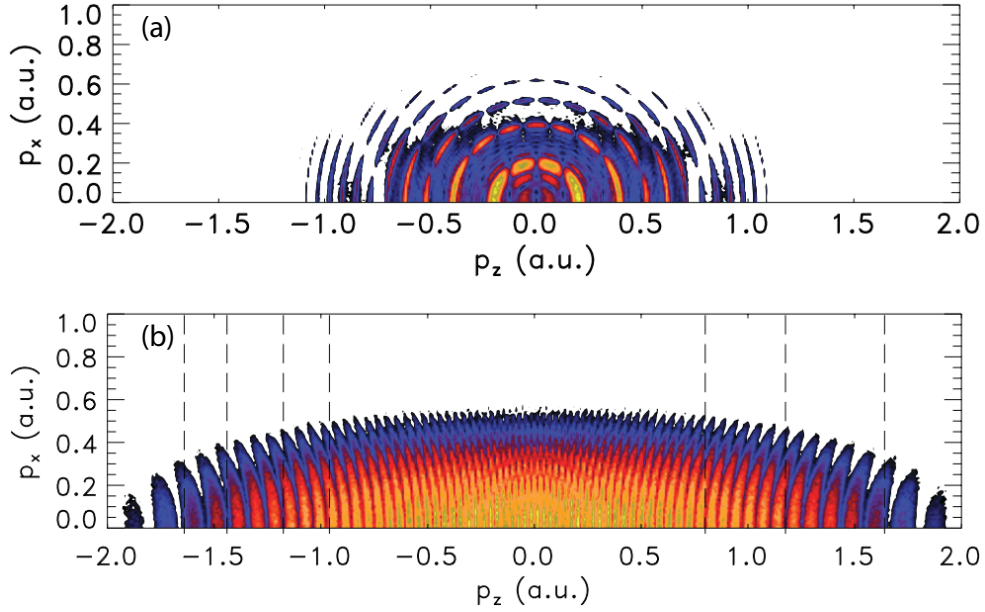
Die Frage, wie gut die Näherung ist, dass die Elektronen keinen Impuls in Polarisationsrichtung am Tunnelausgang haben, wird gegenwärtig in der Literatur diskutiert [8]. Ein Beispiel für eine zweidimensionale Verteilung unter Berücksichtigung der ADK-Theorie ist in Abb. 2.4 dargestellt.



**Abbildung 2.4:** Mit der ADK-Formel 2.13 ausgerechnete Photoelektronenimpulsverteilungen für linear polarisiertes Licht mit den Intensitäten  $I=5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  (a),  $I=1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (b) und  $I=3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (c). Der maximale Impuls, den die Elektronen aufnehmen können, entspricht  $2\sqrt{U_p}$  und ist 0,647 au (a), 1,08 au (b) und 1,59 au (c).

### 2.3.1 Elektroneninterferenz

Sobald die Welche-Weg-Information der zum Detektor fliegenden Elektronen prinzipiell nicht vorhanden ist, können sie miteinander interferieren. Der Laserpuls fungiert dabei als zeitlicher Doppelspalt und die verschiedenen Möglichkeiten, zu welcher Zeit im Puls die Elektronen geboren wurden, führen zur Interferenz. Bei Vernachlässigung der Wechselwirkung der im Laserpuls geborenen Elektronen mit dem verbleibenden Ion gibt es zwei mögliche Interferenzkanäle: Erstens die „Intercycle“-Interferenz (Abb. 2.5(a)), bei der Elektronen aus verschiedenen Perioden des Laserpulses stammen. Die im Elektronenimpulsspektrum resultierende Interferenzstruktur besteht aus Ringen zentriert um Impuls null. Diese werden als ATI-Peaks bezeichnet. Zweitens die „Intracycle“-Interferenz (Abb. 2.5(b)), bei der solche Elektronen miteinander interferieren, welche bei gleicher Periode des Laserfeldes geboren werden. Eine detailliertere Beschreibung der verschiedenen Interferenzkanäle, auch bei Berücksichtigung des ionischen Potentials, findet sich in Abschnitt 7.1.



**Abbildung 2.5:** Gerechnete Elektronenimpulsverteilungen, bei denen die Intercycle-Interferenzen (a) und die Intracycle-Interferenzen (b) den dominierenden Anteil des Spektrums bilden. Abbildung entnommen aus [9].

### 2.3.2 Elektronentrajektorien

Nach der qualitativen Darstellung der Starkfeldionisation in den vorigen Abschnitten, soll hier der Verlauf der einzelnen Elektronentrajektorien nach der Ionisation beschrieben werden. Der Impuls, den solche Elektronen aufnehmen können, die direkt vom zurückbleibenden Ion wegfiegen und am Detektor näherungsweise nach unendlicher Zeit ankommen, kann durch

$$p_{\parallel} = -eF = -e \int_{t_i}^{\infty} E(t) dt = eA(t_i) \quad (2.15)$$

berechnet werden. Der Endimpuls ist also durch das Vektorpotential zum Zeitpunkt der Ionisation  $t_i$  gegeben. Für die Näherung eines langen Pulses, in dem die Einhüllende konstant bleibt und unter Vernachlässigung des Anfangsimpulses der Elektronen lässt sich  $p_{\parallel}$  schreiben als

$$p_{\parallel} = \frac{eE_0}{\omega} \sin(\omega t_i). \quad (2.16)$$

Der maximal erreichbare Impuls der direkten Trajektorien ist

$$p_{\parallel}^{max} = \frac{eE_0}{\omega} = 2\sqrt{mU_p}. \quad (2.17)$$

### Rückstreuung

Die Trajektorie soll hier für den eindimensionalen Fall unter Vernachlässigung des Coulomb-Potentials berechnet werden. Sie ergibt sich aus zweifacher Integration der auf das Elektron wirkenden Kraft  $F = -eE(t)$

$$m \int_{t_i}^t \frac{dv}{dt} = -e \int_{t_i}^t E_0 \cos(\omega t) dt'. \quad (2.18)$$

Daraus folgt für den Impuls

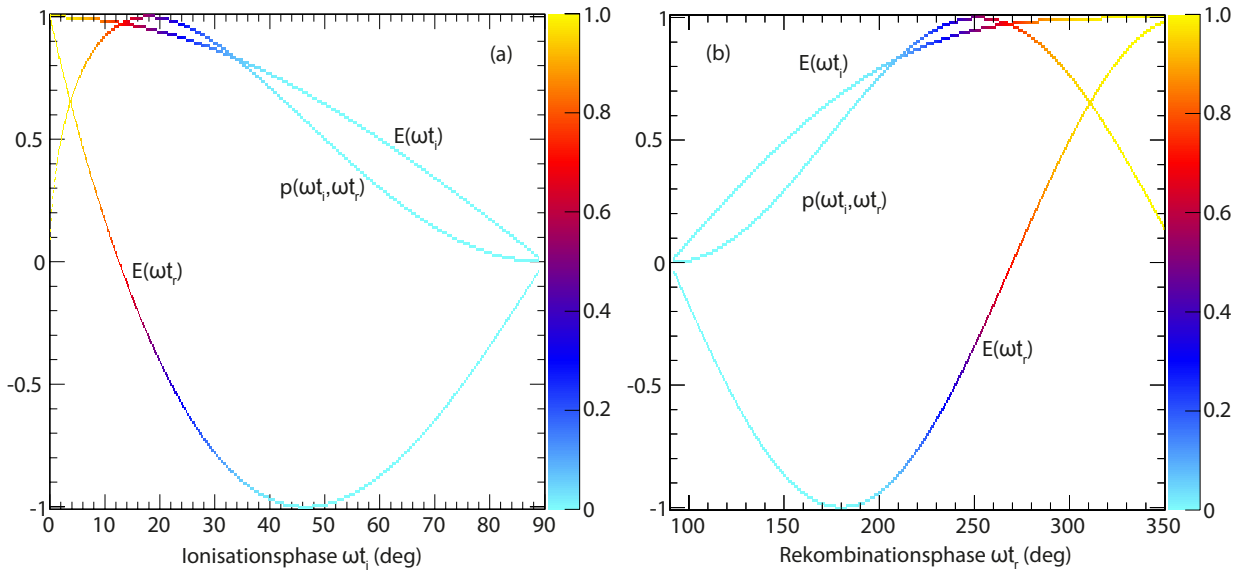
$$p(t, t_i) = -\frac{eE_0}{\omega} (\sin(\omega t) - \sin(\omega t_i)) + p_i, \quad (2.19)$$

wobei der Anfangsimpuls hier zur Vereinfachung auf null gesetzt wird ( $p_i = 0$ ). Erneute Integration führt zur Bahngleichung

$$\int_{t_i}^t p(t, t_i) dt' = \quad (2.20)$$

$$r(t, t_i) = \frac{eE_0}{m\omega^2} (\cos(\omega t) - \cos(\omega t_i) + \omega \sin(\omega t_i)(t - t_i)) + r_i. \quad (2.21)$$

Der Anfangsort  $r_i$  wird wieder als null angenommen. Die Resultate der numerischen Lösung dieser Gleichung sind in Abb. 2.6 dargestellt.

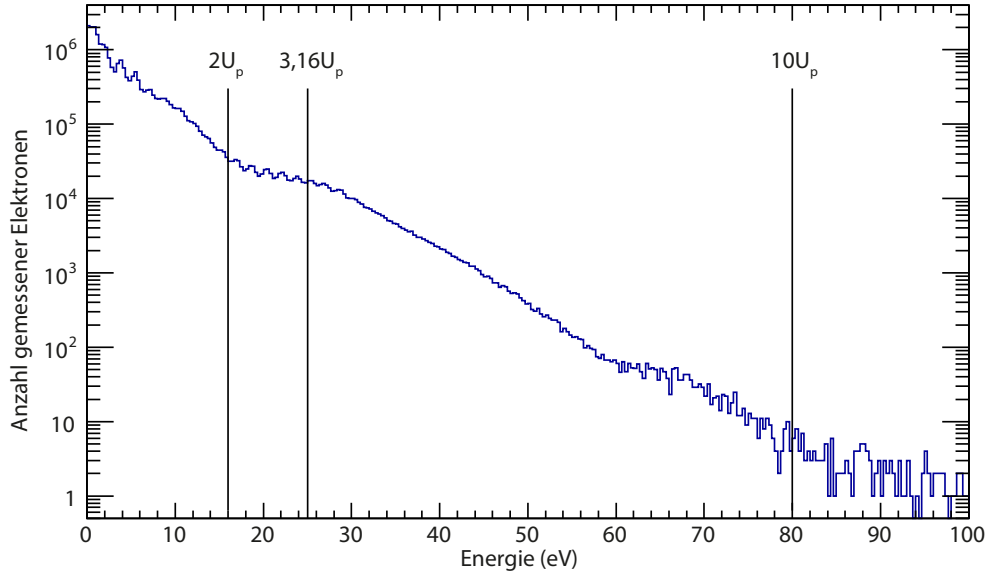


**Abbildung 2.6:** In (a) ist auf der horizontalen Achse die Ionisationsphase  $\omega t_i$  aufgetragen. In Abhängigkeit dieser sind das elektrische Feld zum Zeitpunkt des Tunnelns  $E(\omega t_i)$ , das elektrische Feld zum Rekollisionszeitpunkt  $E(\omega t_r)$  und der Rückstreimpuls dargestellt. Farblich kodiert gibt die auf eins normierte ADK-Rate die Tunnelwahrscheinlichkeiten der zu den jeweiligen Kurven gehörigen Elektronentrajektorien an. In (b) sind die gleichen Kurven gegen die Rekollisionsphase  $\omega t_r$  aufgetragen.

Die Elektronen erhalten eine maximale Rückstreuenergie von  $E_{rückstreu}^{max} = 3,16U_p$ , wenn sie bei einer Phase von  $\approx 18^\circ$  starten. Diese kommen bei der Laserphase  $\approx 252^\circ$  zurück. Diesem Modell zufolge haben Elektronen bei linear polarisiertem Licht mit einer Intensität von  $I=1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und einer Wellenlänge von 780 nm eine maximale Rückstreuenergie von etwa  $E_{rückstreu}^{max} = 25 \text{ eV}$ , wobei  $U_p$  ca. 7,95 eV beträgt.

### 2.3.3 Photoelektronenenergiespektrum

Wie in Abschnitt 2.1 gezeigt, beträgt die maximale Energie der direkten Elektronen  $2U_p$ . An dieser Stelle gibt es einen Abfall („cutoff“) der Energieverteilung um mehrere Größenordnungen. Bei größeren Energien weist das Spektrum ein Plateau [10] auf, welches etwa bis zu einer Energie von  $10U_p$  reicht (s. Abb. 2.7). Die Maximalenergie von  $10U_p$  wird dann erreicht, wenn ein Elektron mit einer Energie von  $3,16U_p$  zum Kern zurück kommt und dort elastisch um  $180^\circ$  streut.



**Abbildung 2.7:** Messung der Einfachionisation von Argon mit linearem Licht bei einer Wellenlänge von 780 nm.  $2U_p$  liegt etwa bei 16 eV Elektronenenergie und das Plateau endet in etwa bei 80 eV.

## 2.4 Keldysh Parameter

Der Keldysh Parameter drückt aus, ob der nichtlineare Ionisationsprozess eher durch das Modell der Multiphotonenionisation (MPI)  $\gamma \gg 1$  oder das der Tunnelionisation  $\gamma \ll 1$  beschrieben werden sollte [11]. Er ist definiert als

$$\gamma = \frac{\omega}{\omega_t} = \frac{t_{tunnel}}{2\pi\tau}, \quad (2.22)$$



wobei  $\omega = 1/2\pi\tau$  die Oszillationsfrequenz des externen Laserfeldes ist und

$$t_{\text{tunnel}} = 1/\omega_t = \frac{\sqrt{2m_e I_p}}{eE} \quad (2.23)$$

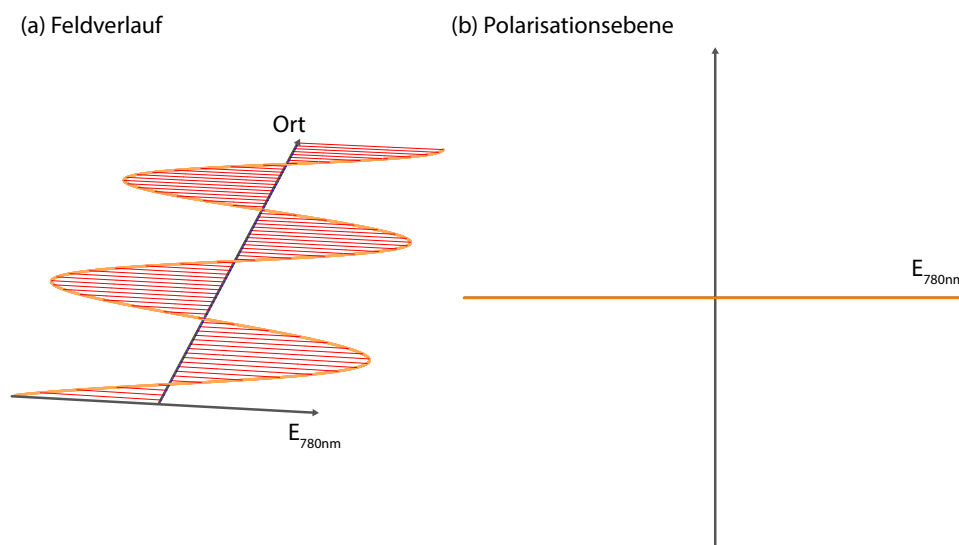
die Tunnelzeit. Ist die Tunnelzeit zu lang gegenüber der Laserperiode, hat das Elektronenwellenpaket nicht genügend Zeit, um durch die Barriere zu laufen. In diesem Fall wird die Ionisation störungstheoretisch im Modell der MPI beschrieben. Im Bereich der Tunnelionisation ändert sich das elektrische Feld des Laserpulses langsam im Vergleich zur Tunnelzeit, weshalb genügend Zeit für den Tunnelvorgang vorhanden ist. Für die Einfachionisation von Argon und den gleichen Parametern wie im vorigen Abschnitt, ergibt sich ein Wert für den Keldysh Parameter von  $\gamma \approx 0,16$ . Dieser Wert liegt noch im Grenzbereich, in dem keine eindeutige Zuordnung möglich ist und die Effekte beider Modelle berücksichtigt werden müssen.

## 2.5 Feldgeometrien

Das Photoelektronenimpulsspektrum bei Tunnelionisation in starken Feldern wird maßgeblich von der Form des ionisierenden Pulses beeinflusst. Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Formen des elektrischen Feldes lassen sich in drei Typen einteilen, welche im Folgenden vorgestellt werden. In den jeweiligen Ergebniskapiteln wird noch genauer auf die Eigenschaften der Felder eingegangen und eine Übersicht darüber gegeben, in welchen Experimenten sie bisher verwendet wurden.

### 2.5.1 Linear polarisiertes Licht

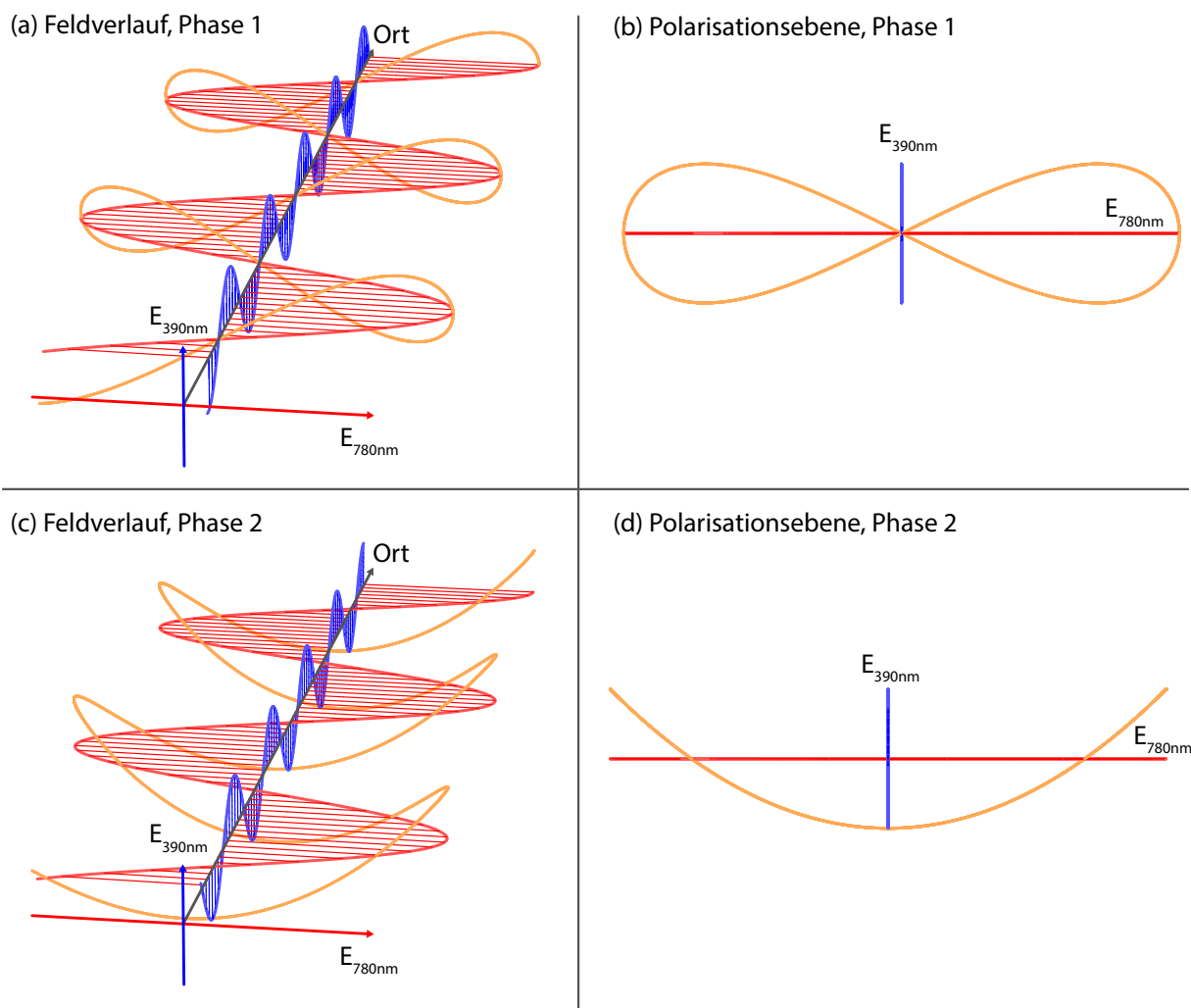
Im einfachsten Fall ist das elektrische Feld des Laserpulses linear polarisiert. Wie in Abb. 2.8 zu sehen, schwingt der Feldvektor nur in einer Raumrichtung und es ergeben sich Photoelektronenimpulsverteilungen in Abhängigkeit der Intensität, wie bereits in Abb. 2.4 gezeigt.



**Abbildung 2.8:** Linear polarisiertes Licht, dessen Feldvektor nur in einer Raumrichtung schwingt. In (a) ist der örtliche Feldverlauf und in (b) die Schwingung des elektrischen Feldes (orange) in der Polarisationssebene dargestellt.

## 2.5.2 Orthogonal polarisierte Zwei-Farben-Felder

Werden zwei Pulse zeitlich und räumlich übereinandergelegt, addieren sich ihre Feldvektoren zu jedem Zeitpunkt. Deshalb können asymmetrische Felder erzeugt werden, welche Elektronen nach ihrer Geburt je nach Phase zwischen den beiden Pulsen steuern können. In dieser Arbeit wurden die Zwei-Farben-Felder, 780 nm und deren zweite Harmonische mit der Wellenlänge von 390 nm, senkrecht zueinander polarisiert und anschließend gemischt. In der Literatur wird dieser Feldverlauf „Orthogonal Two-Color“ (OTC) genannt und im Weiteren auch so bezeichnet. Das zweite Harmonische Feld war dabei schwach, sodass es zwar kaum zur Ionisation beitrug, die Elektronen jedoch nach dem Tunneln ablenken konnte. Deshalb wird es auch als „Streakingfeld“ bezeichnet. Der Feldverlauf der einzelnen Komponenten (780 nm  $\hat{=}$  rot, 390 nm  $\hat{=}$  blau) und des Summenfeldes (orange) ist in Abb. 2.9 dargestellt. Durch das Einstellen der Phase zwischen den beiden Feldern ändert sich die Feldgeometrie stark und die Elektronenimpulsverteilungen ändern sich dementsprechend. Bei der exemplarischen Phase 1 (Abb. 2.9(a),(b)) ist der elektrische Feldverlauf symmetrisch, während er bei Änderung der Phase (Abb. 2.9(c),(d)) stark asymmetrisch ist. Da die getunnelten Elektronen einen Impuls entsprechend des negativen Vektorpotentials erhalten (siehe Gleichung 2.15), ist eine Kontrolle der getunnelten Elektronen durch Einstellen der Phase möglich.

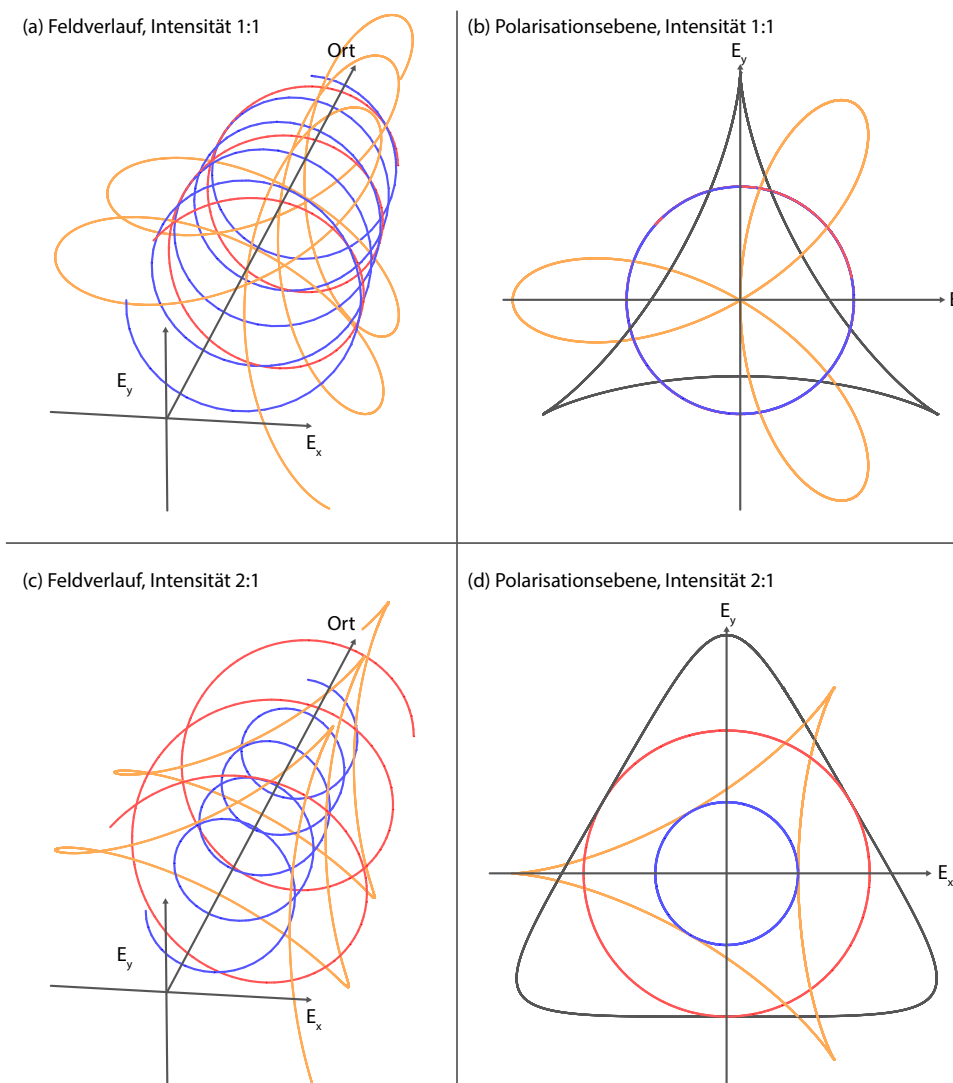


**Abbildung 2.9:** Der örtliche Verlauf der elektrischen Felder (a),(c) und in der Polarisationssebene (b),(d). Die senkrecht zueinander polarisierten Pulse (780 nm  $\hat{=}$  rot, 390 nm  $\hat{=}$  blau) addieren sich je nach Phase zueinander zu einem Gesamtfeld (orange). Der Phasenschub von Phase 1 zu Phase 2 beträgt  $\pi/2$ .

### 2.5.3 Entgegengesetzt zirkular polarisierte Zwei-Farben-Felder

Wenn die beiden Farben jeweils beliebige Polarisationen (linear, elliptisch, zirkular) einnehmen dürfen, ergibt sich der allgemeinste Fall der Überlagerung. So sind elektrische Feldverläufe mit sieben verschiedenen einstellbaren Freiheitsgraden denkbar: zwei absolute Intensitäten, zwei Elliptizitäten, Drehsinn zueinander, Ausrichtung der Hauptachsen der Polarisationsellipsen zueinander und der Phase zwischen den beiden Farben. Mit dieser Vielzahl an möglichen Feldverläufen ist die Untersuchung unterschiedlicher physikalischer Effekte möglich. In dieser Arbeit wurden Messungen mit dem Spezialfall von entgegengesetzt zirkular polarisierten Zwei-Farben-Feldern durchgeführt. Entsprechende Feldverläufe

für zwei verschiedene Intensitäten sind in Abb. 2.10 dargestellt. Wieder ist der örtliche Feldverlauf Abb. 2.10(a),(c) und der Verlauf in der Polarisationssebene Abb. 2.10(b),(d) der einzelnen zirkularen Pulse (780 nm  $\hat{=}$  rot, 390 nm  $\hat{=}$  blau) und des Summenfeldes (orange) gezeichnet. Zudem ist in den Bildern in der Polarisationssebene das negative Vektorpotential eingezeichnet, welches zeigt, welche Endimpulse die Elektronen haben werden.



**Abbildung 2.10:** Wenn der 780 nm Puls (rot) und seine zweite Harmonische (blau) entgegengesetzt zirkular polarisiert sind, ergibt sich bei einem Intensitätsverhältnis von 1:1 ein Gesamtfeld, welches einem Propeller ähnelt (a),(b). In den Polarisationssebenen (b),(d) ist zusätzlich noch das Vektorpotential eingezeichnet, welches den Endimpuls der getunnelten Elektronen widerspiegelt. Die Änderung des Feldverlaufs bei Änderung der Intensität auf  $I_{780\text{nm}}/I_{390\text{nm}} = 2/1$ , ist in (c) und (d) zu sehen.

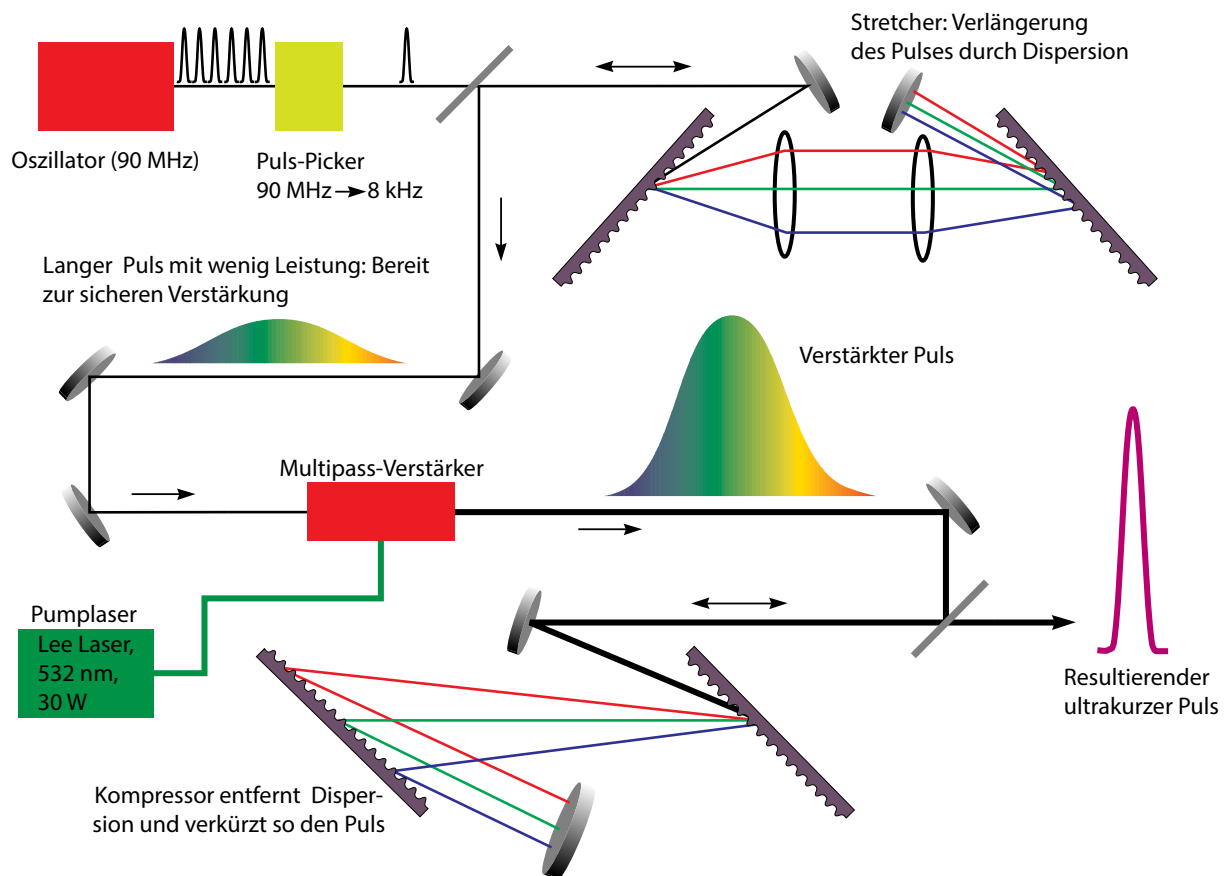
# Kapitel 3

## Experiment

Nach der Erzeugung der Femtosekundenlaserpulse in dem Titan-Saphir-Lasersystem „Dragon“ propagieren sie durch verschiedene optische Elemente, in welchen ihr elektrischer Feldverlauf den jeweiligen experimentellen Anforderungen entsprechend angepasst wird. Im Rahmen dieser Arbeit wurde mit drei verschiedenen Feldkonfigurationen gemessen: lineare Polarisation mit 780 nm Feld, orthogonal polarisierte Zwei-Farben-Felder mit 390 nm und 780 nm (OTC) und zirkular polarisierte Zwei-Farben-Felder mit entgegengesetztem Drehsinn (CRTC). Danach gelangen die Laserpulse in die COLTRIMS-Apparatur, in der sie auf einen dünnen Gasstrahl treffen und die darin befindlichen Atome ionisieren. Die Flugzeiten und Auftrefforte der entstehenden Fragmente werden vermessen und mittels der Datenanalyse die Anfangsimpulse in drei Dimensionen kurz nach der Ionisation rekonstruiert. Nachfolgend wird zuerst das laserpuls-erzeugende System erläutert, gefolgt von der Beschreibung der COLTRIMS Messmethode. Anschließend wird noch genauer auf die optischen Aufbauten eingegangen, welche zu den verschiedenen elektrischen Feldverläufen führen.

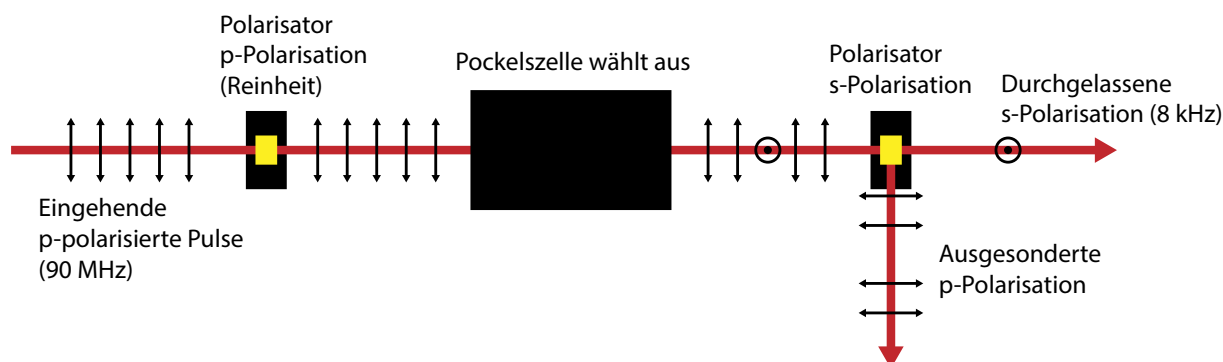
### 3.1 Lasersystem

Das verwendete Lasersystem Dragon ist kommerziell von der Firma KMLabs erhältlich und liefert mit den Einstellungen für dieses Experiment Femtosekundenpulse der Zentralwellenlänge 780 nm mit einer Wiederholrate von 8 kHz. Die Pulsdauer beträgt etwa 40 fs und die spektrale Breite 40 nm. Die Pulsenergie kann über den Pump Laser geregelt werden und ihr Maximum liegt bei 0,5 mJ pro Puls. Die Funktionsweise des Lasersystems ist an die Beschreibung des dem Lasersystem entsprechenden Handbuchs [12] angelehnt. Die wichtigsten Bestandteile des gesamten Systems (Abb. 3.1, [13]) sind Oszillator, Puls-Picker, Stretcher, Pump-Laser, Multipass-Verstärker und Kompressor.



**Abbildung 3.1:** Funktionsweise des verwendeten „Chirped-Pulse-Amplifiers“. Nach der Pulserzeugung im Oszillator wird die Rate der Pulse im Puls-Picker von 90 MHz auf 8 kHz abgesenkt. Im vom 532 nm Pumplaser gepumpten Titan-Saphir-Kristall des Multipass-Verstärkers werden die gechirpten Pulse verstärkt und im Kompressor wird der Chirp schließlich entfernt. Die resultierenden kurzen Pulse sind sehr nahe am Fourier-Transform-Limit. Abbildung entnommen aus [13].

Der Oszillator besteht aus einem Titan-Saphir-Kristall, welcher mit einem 532 nm cw-Laser von Coherent (Verdi, 5W) gepumpt und so Besetzungsinversion hergestellt wird. Durch den optischen Kerr Effekt in Verbindung mit dem „self-focusing Effekt“ entstehen Femtosekundenpulse im Abstand von 90 MHz. Von diesen Pulsen bleiben nach dem Puls-Picker nur noch 8 kHz übrig. Seine Funktionsweise beruht auf dem Pockels-Effekt, bei dem der Brechungsindex eines elektrooptischen Kristalls bei Anlegen einer externen Spannung geändert wird (Abb. 3.2, [12]). So wird die Polarisation einiger eingehender Pulse von p- zu s-Polarisation geändert und in einem nachfolgenden Polarisator werden nur die s-polarisierten Pulse mit einer Rate von 8 KHz durchgelassen.



**Abbildung 3.2:** Der Puls-Picker verkleinert die Pulsrate von 90 MHz auf 8 kHz. Eine Pockelszelle dreht die Polarisation der eingehenden Pulse im 8 kHz-Intervall um  $90^\circ$  von p- zu s-Polarisation. Nur die gedrehten Pulse gelangen durch den darauf folgenden Polarisator, da er nur s-polarisierte Pulse durchlässt. Abbildung entnommen aus [12]

Damit die Pulse verstärkt werden, ohne dabei den Verstärkerkristall zu beschädigen, werden sie zuvor in dem Stretcher verlängert, indem ihnen mittels zweier Gitter ein positiver zeitlicher Chirp hinzugefügt wird. So wird der Subpicosekundenpuls auf mehrere hundert Picosekunden verlängert. In dem Multipass-Verstärker findet die eigentliche Verstärkung des Pulses statt. Um in dem Titan-Saphir-Verstärkerkristall eine Besetzungsinversion herzustellen, wird er mit einem 532 nm Pump laser von Lee Laser mit 30 W synchron gepumpt. Der zu verstärkende Puls propagiert insgesamt 13 Mal durch den Verstärkerkristall und gewinnt bei jedem Durchlauf an Intensität. Zuletzt wird er im Kompressor, welcher wie ein umgekehrter Stretcher funktioniert, bis zu seinem Fourier-Transform-Limit verkürzt.

## 3.2 COLTRIMS

Für die Impulsspektroskopie wird ein COLTRIMS (COld Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy) Reaktionsmikroskop [14, 15] verwendet. Damit ist es möglich, Ionisationsprodukte einzelner Ionisationsereignisse in einem Akzeptanzraumwinkel von  $4\pi$  koinzident zu messen. Alle geladenen Fragmente einer atomaren Reaktion werden durch eine Kombination aus elektrischem und magnetischem Feld auf orts- und zeitempfindliche Detektoren projiziert. Aus den gemessenen Flugzeiten und den Auftrefforten der Teilchen auf dem Detektor kann ein dreidimensionaler Impulsvektor rekonstruiert werden. Durch Überschallgasexpansion werden die Targetatome vor der Fragmentation gekühlt, wodurch eine hohe Impulsauflösung erreicht werden kann.

### 3.2.1 Kammer

Das COLTRIMS Experiment kann nicht in Luft unter atmosphärischem Druck durchgeführt werden, weil dann einzelne Komponenten, wie zum Beispiel der Überschallgasjet oder

die Detektoren nicht funktionieren würden. Daher muss es von einer Kammer umgeben sein, in der durch ein komplexes Pumpensystem Vakuum herstellbar ist. Bei Verwendung eines Femtosekundenlasers zur Anregung des Targets wird ein besonders niedriger Druck im Ultrahochvakuumbereich ( $\approx 10^{-10}$  mbar) benötigt, da die Ionisationswahrscheinlichkeit für die verwendeten Laserintensitäten fast eins ist und so die Nachweiseffizienz für die zu messende Reaktion reduziert wird. Die Teilchendichte beträgt bei diesem Vakuum immer noch etwa 2400 Teilchen pro  $\text{mm}^3$ . Dies entspricht etwa 0,04 Teilchen in dem in dieser Arbeit eingesetzten Fokusbereich ( $1,5 \cdot 10^{-5} \text{ mm}^3$ ).

Um solch einen niedrigen Druck zu erzeugen, ist die Verwendung eines komplexen Pumpensystems notwendig. Das Vorvakuumssystem, bestehend aus Membran- und Scrollpumpen, ist eine Bedingung für die Verwendung der Turbomolekularpumpen. Von diesen sind sieben Stück mit verschiedenen Saugleistungen an der Kammer angebracht. Des Weiteren muss die Kammer mehrere Tage bei einer Temperatur von etwa  $150^\circ\text{C}$  ausgeheizt werden, um das sich in den Wänden befindliche Wasser schneller herauszulösen. Ohne das Ausheizen würde das Entfernen des Wassers aus den Wänden mehrere Jahre dauern. Dennoch bleiben immer einige Atomlagen Wasser auf den Kammerwänden zurück. Außerdem muss auf Fettfreiheit in der Kammer geachtet werden, so ein virtuelles Leck entsteht, welches das Vakuum permanent verschlechtert. So wurde ein Vakuum von  $1,2 \cdot 10^{-10}$  mbar erreicht.

### 3.2.2 Präparation des Targets

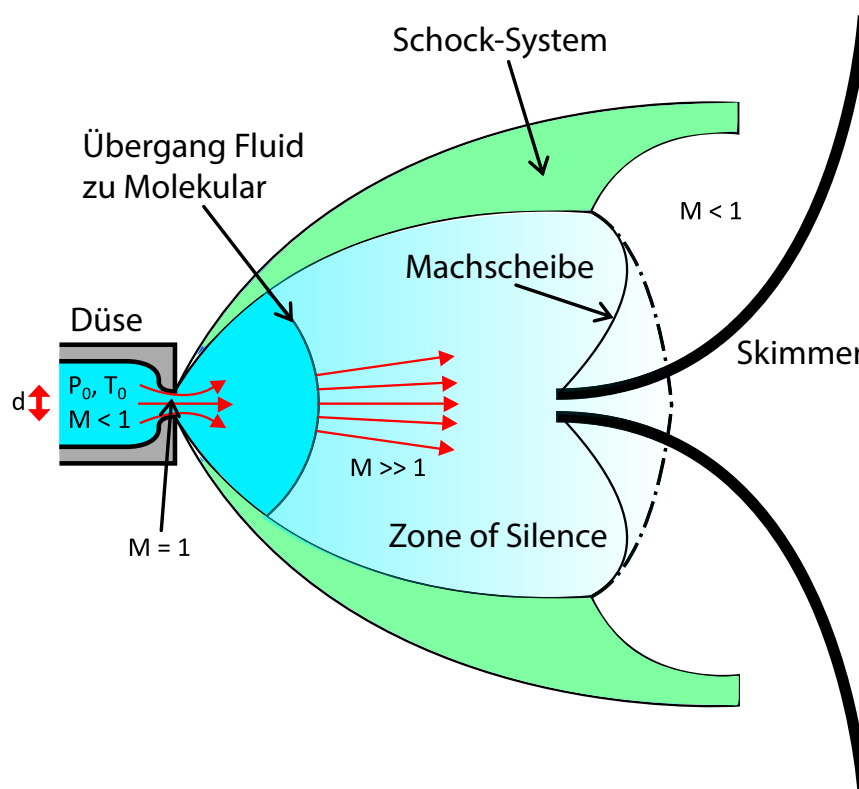
Um die Impulse der Elektronen mit ausreichender Genauigkeit ermitteln zu können, ist eine möglichst genaue Kontrolle der Targetparameter vor der Ionisation notwendig. Vor allem soll der Eigenimpuls der Teilchen geringer als der durch die Reaktion entstehende Impuls sein.

Um einen dichten und monochromatischen Strahl neutraler Atome zu erhalten, wird die Methode der Überschallgasexpansion verwendet [7, 16, 17]. Wie in Abbildung 3.3 schematisch dargestellt, wird ein Gas mit dem Anfangsdruck  $P_0$  und der Anfangstemperatur  $T_0$  durch eine Düse mit dem Durchmesser  $d_{\text{Duese}}=30 \mu\text{m}$  in ein Vakuum mit dem Druck  $P_b$  expandiert. Bei der Expansion steigt die Fließgeschwindigkeit, auch als Machzahl  $M$  beschrieben, stark an. Die Machzahl ist definiert als das Verhältnis von Fließgeschwindigkeit zu lokaler Schallgeschwindigkeit. Anfangs ist der Fluss noch in einem kontinuierlichen Bereich, jedoch nimmt während der weiteren Expansion die Gasdichte stark ab und es erfolgt ein Übergang in den freien Molekularfluss. Dieser Bereich wird „Zone of Silence“ genannt, deren Länge durch

$$L_{\text{ZoS}} = \frac{2}{3} \sqrt{\frac{P_0}{P_b}} \cdot d_{\text{Duese}} \quad (3.1)$$

gegeben ist.



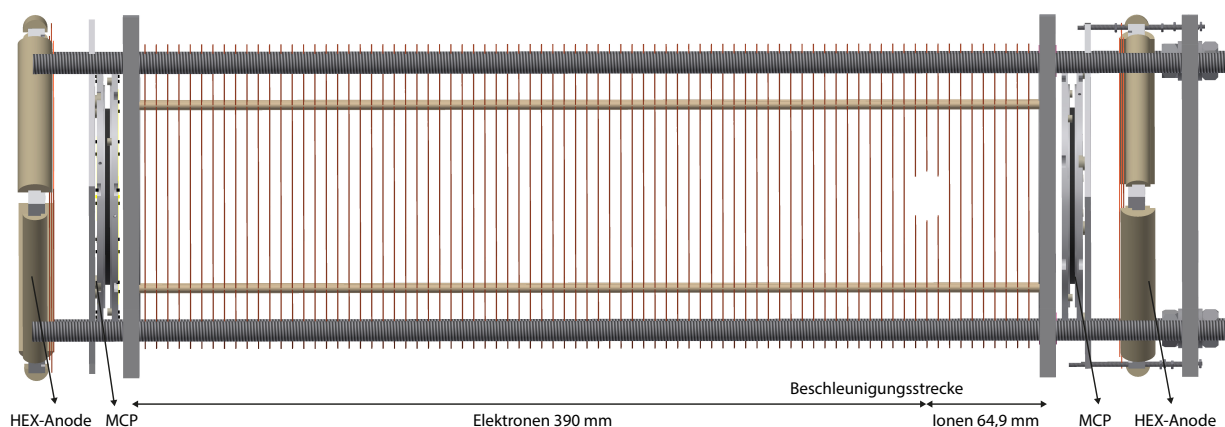


**Abbildung 3.3:** Die schematische Darstellung der Überschallgasexpansion (bearbeitet und entnommen aus [17]). Bei der Expansion aus einem Bereich mit höherem Druck  $P_0$  durch eine Düse in einen Bereich niedrigeren Drucks  $P_b$  kommt es nach kurzer Propagation nach der Düse zu einer schnellen Expansion mit  $M \gg 1$ . In der „Zone of Silence“ (ZOS) ist der Strahl bereits stark abgekühlt, was zu einer verschwindend geringen longitudinalen Relativgeschwindigkeit zwischen den Teilchen im Strahl führt. Bevor die ZOS zusammenbrechen würde, wird ein Skimmer in diese eingeführt.

Dabei kühlt der Strahl stark ab, denn alle Teilchen haben nahezu dieselbe longitudinale Geschwindigkeit und somit eine longitudinale Relativgeschwindigkeit von fast null. Damit zumindest ein Teil des Strahls nicht durch die aufgrund des Restgases in der Expansionskammer entstehenden Schockfronten zusammenbricht, wird ein Skimmer (s. Abb. 3.3) mit dem Durchmesser  $300 \mu\text{m}$  in die Zone of Silence eingeführt. Außerdem wird so die Größe des Strahls und damit das Reaktionsvolumen begrenzt. Dort besitzt der Strahl typischerweise eine transversale Ausdehnung von etwa  $2 - 3 \text{ mm}$ . Um das Vakuum in der Kammer durch den Jet nicht übermäßig zu verschlechtern, wird der Jet in einer kleinen Kammer, dem „Jet-Dump“, aufgefangen und dort durch eine Turbomolekularpumpe in das Vorvakuumssystem weitergeleitet.

### 3.2.3 Spektrometer

Mit dem Spektrometer ist es möglich, die bei der Reaktion entstehenden geladenen Fragmente auf die Detektoren zu lenken. Es besteht im Wesentlichen aus einem Extraktionsbereich, in dem ein homogenes elektrisches Feld durch 80 Kupferplatten (Abb. 3.4) mit dem Durchmesser 130 mm, welche durch ohmsche Widerstände elektrisch verbunden sind, erzeugt wird. Die an die Kupferplatten angelegte Spannung betrug je nach experimentellen Anforderungen zwischen 30 V und 400 V, was etwa dem Bereich von 1 V/cm bis 11 V/cm entspricht. So wurde sie für die in Kapitel 6 („Zero Kinetic Energy Structure“) durchgeführte Messung systematisch durchgeföhren, da der darin beschriebene physikalische Effekt vom elektrischen Feld des Spektrometers abhängt. Außerdem bestimmt das Spektrometerfeld bis zu welchem Betrag Impulse in der Detektorebene auf den Detektoren landen. Deshalb wurde zum Beispiel für die Messung in Kapitel 5 („Doppelt angeregte Zustände“) eine niedrige Spektrometerspannung verwendet, bei der zwar nur Impulse in der Detektorebene bis etwa 0,5 au aufgenommen werden konnten, jedoch die Impulsaufösung besser war als bei höheren Spektrometerspannungen. Obwohl an den Ein- und Austritts-orten des Jets und des Lasers Teile der Kupferplatten abgetrennt wurden, bleibt das Feld innerhalb des Spektrometers weitestgehend homogen.



**Abbildung 3.4:** Schematische Ansicht des verwendeten Spektrometers. Die Strecke zur Beschleunigung der längeren Elektronenseite beträgt 390 mm und die der Ionenseite 95 mm. Nach der Beschleunigung der Fragmente folgen jeweils ein Gitter, ein MCP und eine HEX-Anode.

Vor den Detektoren sind feinmaschige ( $250\ \mu\text{m}$ ) Metallgitter angebracht, welche das Spektrometer vor Feldeingriffen schützen sollen. Zusätzlich dienen sie der Nachbeschleunigung der geladenen Fragmente, da sie eine Energie von etwa 300 eV haben sollten, bei welcher die Effizienz der MCPs am höchsten ist. Zum Beispiel betrug bei einer Messung das elektrische Feld innerhalb des Spektrometers nur 2 V/cm, was bei einer Elektronenbeschleunigungsstrecke von 40 cm zu einer Energie der Elektronen von 80 eV führt und somit eine Nachbeschleunigung notwendig macht. Ein Nachteil der Gitter ist jedoch, dass die einzelnen Maschen wie elektrostatische Linsen wirken und dadurch die Ortsauflösung verschlechtern.

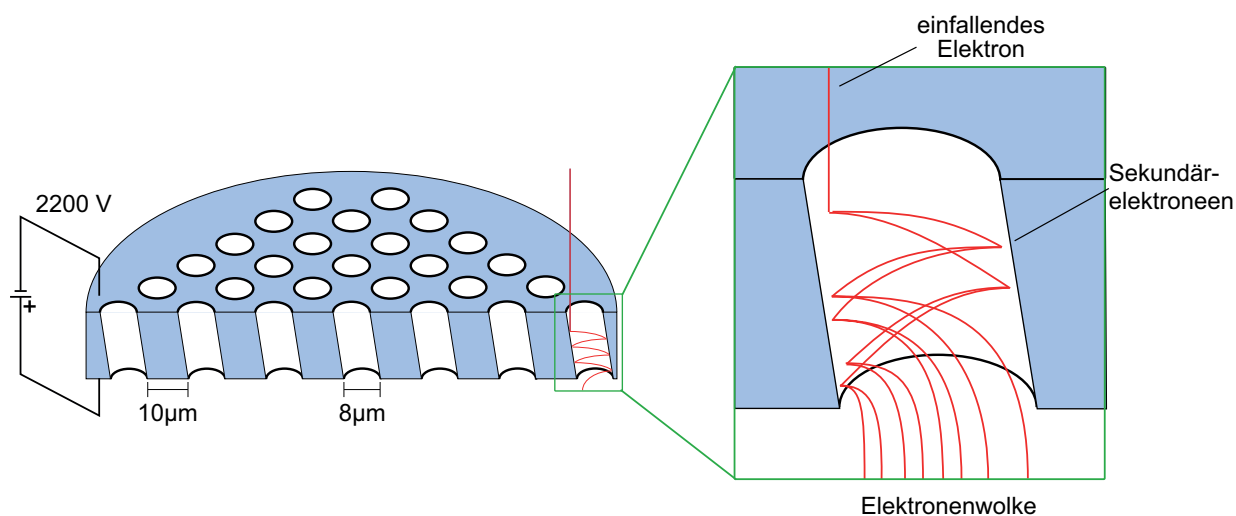
### 3.2.4 Detektoren

Die bei der Reaktion entstehenden Fragmente treffen auf zwei orts- und zeitauflösende Detektoren, welche kommerziell erhältlich sind. Sie bestehen jeweils aus einer Microchannel Plate, wo nach Auftreffen der Teilchen eine Elektronenlawine ausgelöst wird und diese als Elektronenwolke austritt. Die Wolke trifft dann auf eine Delayline-Anode, mit der die 2D-Position der Elektronenwolke festgestellt werden kann.

#### Microchannel Plate

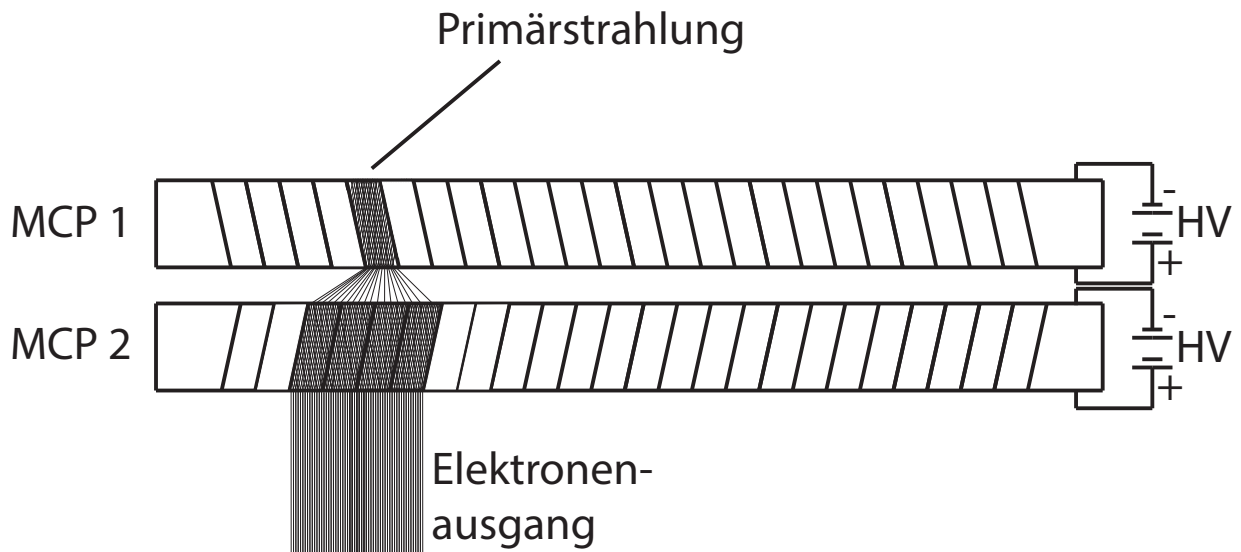
Ein Microchannel Plate (MCP) dient zur Verstärkung von freien Elektronen oder Ionen und kann als Anordnung von  $10^5$  parallel angeordneten Elektronenmultipliern angesehen werden.

Die Platte ist von sehr kleinen Kanälen mit einem Durchmesser von  $13\ \mu\text{m}$  [18] durchzogen, welche gegen die Plattenachse verkippt sind, damit die einfallenden Elektronen auf jeden Fall mehrmals die Kanalwand treffen. Zwischen den mit NiCr beschichteten Platten-seiten liegt eine Spannung von  $2200\ \text{V}$  an, sodass die in die Kanäle eintreffenden Elektronen beschleunigt werden und sich bei jedem Wandstoß vervielfachen können. In Abb. 3.5 ist das Verstärkungsprinzip dargestellt.



**Abbildung 3.5:** Die geladenen Teilchen treffen auf den MCP und werden in den Kanälen durch eine angelegte Spannung beschleunigt. Beim Stoß mit der Wand werden weitere Elektronen herausgelöst und es kommt zur einer Elektronenlawine. Bild entnommen aus [19].

Zur Erhöhung der Effizienz werden die MCPs in „Chevron-Anordnung“ [20] (s. Abb. 3.6) verwendet, bei der die Kanäle gegeneinander verkippt sind. So wird das störende Ionenfeedback unterdrückt, da die an der hinteren Platte erzeugten Ionen durch die Richtungsänderung nicht an den Eingang der vorderen Platte kommen. Typische Verstärkungen um das  $10^7$ -fache sind so möglich.



**Abbildung 3.6:** Durch Verwendung zweier MCP's hintereinander und Verkippung der Kanäle gegeneinander kann die Verstärkung von  $10^4$  auf  $10^7$  erhöht werden. Bild nachgezeichnet aus [20].

### Delayline-Anode

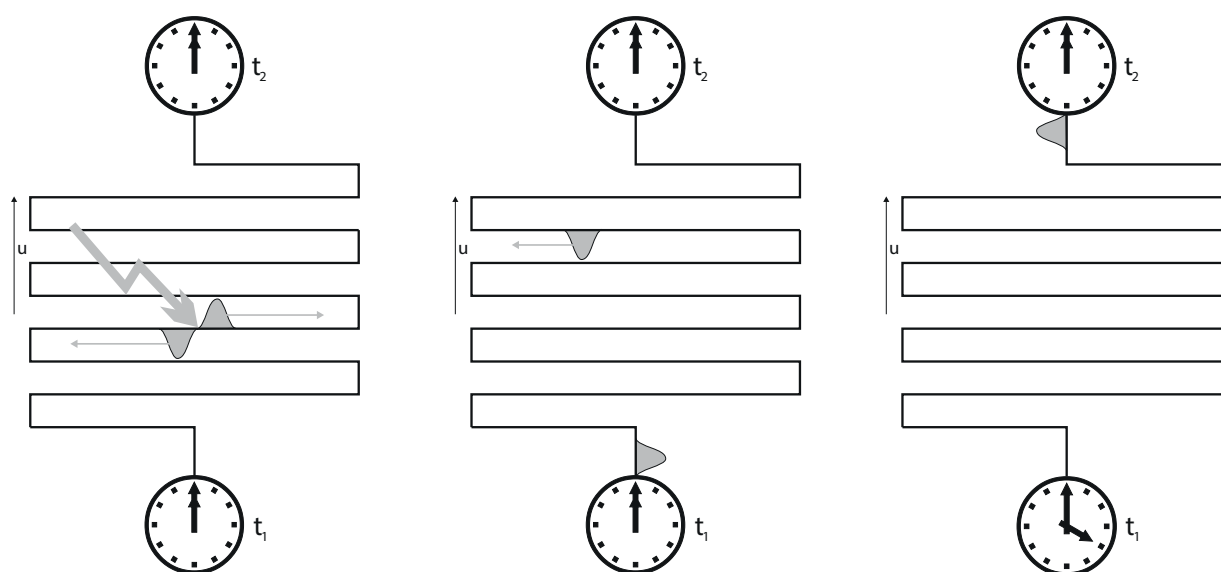
Im Abstand von etwa einem Zentimeter trifft die im MCP erzeugte Elektronenwolke auf die ortsauflösende Delayline-Anode [21]. Bei dieser sind für drei Lagen jeweils zwei Drähte parallel über eine Halterung gewickelt. Die Position des detektierten Teilchens ist für jede Lage unabhängig kodiert in der Zeitdifferenz der an den Drahtenden ankommenden Signale. Durch die große Verbreiterung der Elektronenwolke wird an mehreren Drähten einer Lage ein Signal induziert, wobei der genaue Auftreffort durch Ermittlung des Signalpulsschwerpunkts auf etwa 0,3 mm genau bestimmt werden kann. Das zugrundeliegende Prinzip kann mittels Abbildung 3.7 aus [22] verdeutlicht werden. Trifft die Elektronenwolke vom MCP am Ort  $u$  auf die Anode, bilden sich zwei Spannungspulse, die mit der Geschwindigkeit  $v$  jeweils zu den Enden des Drahtes propagieren. Über die gemessenen Ankunftszeiten lässt sich  $u$  berechnen,

$$u = f \cdot (t_1 - t_2), \quad (3.2)$$

wobei  $f = v/2$  den Skalenfaktor darstellt.

Zur Unterdrückung des Störsignals wird für jede Ebene ein Drähtepaar, bestehend aus einem Signal- und einem Referenzdraht, verwendet. Dabei ist der Signaldraht auf einem 50 V höheren Potential, wodurch das echte Signal bevorzugt auf diesem Draht induziert wird. Da das Störsignal auf beiden Drähten erzeugt wird, kann es durch Differenzbildung der beiden Signale herausgerechnet werden.

Die Verwendung dreier Lagen gibt redundante Positionsinformationen, denn zur zweidimensionalen Ortsberechnung sind nur die Signale zweier Lagen erforderlich. Drei Lagen haben aber verschiedene Vorteile, darunter die Rekonstruktion verlorener Signale durch



**Abbildung 3.7:** Nach Auslösen zweier Spannungspulse durch die Elektronenwolke vom MCP kann durch die Bildung der Differenz der gemessenen Ankunftszeitsignale der Auftreffort bestimmt werden. Bild entnommen aus [22].

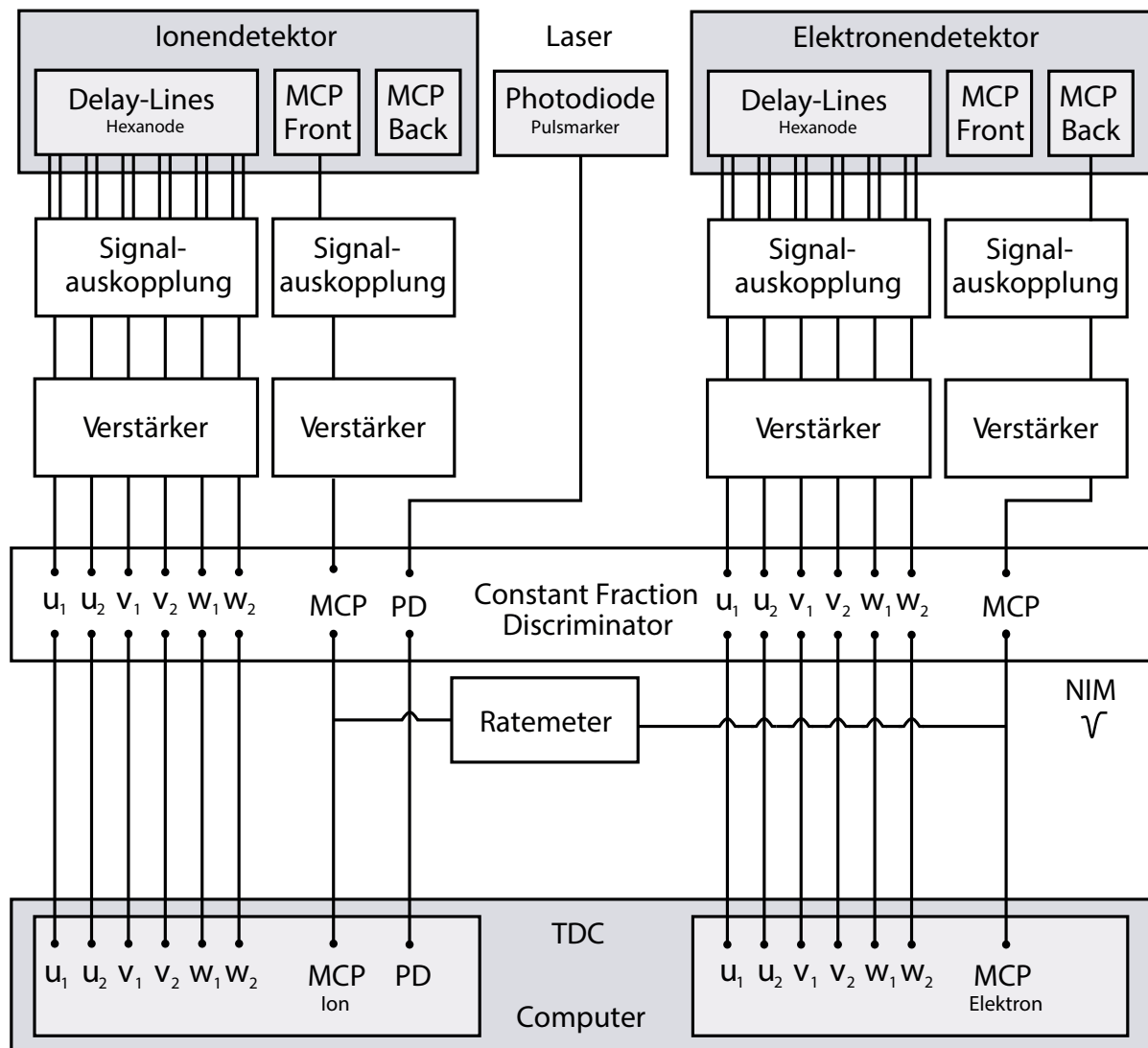
elektronische Totzeit. Außerdem wird Kontrolle über die intrinsische Auflösung und Linearität der Anode gewonnen, wodurch die gesamte Abbildungsqualität verbessert wird. Das Koordinatensystem der Hexanode, bestehend aus drei Achsen in einer Ebene, kann leicht in das kartesische System umgerechnet werden.

Im Experiment wurde sowohl im Elektron- als auch im Ionendetektor eine RoentDek HEX 80 Anode verwendet, welche drei Delaylines im Winkel von  $60^\circ$  angeordnet hat.

### 3.2.5 Signalverarbeitung

Die analogen Signale aus den Detektoren werden an der jeweiligen Detektorseite über möglichst kurze Kabel aus dem Vakuum herausgeführt und kapazitiv ausgekoppelt. Bei der Auskopplung der Signale zu dem  $50\ \Omega$  Koaxialkabel kann ihre Impedanz durch regelbare Potentiometer angepasst werden. So kann die Auskopplung elektronischer Reflexionen an den Übergängen vermieden werden. Der Signalweg ist schematisch in Abb. 3.8 dargestellt. Zur Verringerung von Störungen wird nach der Auskopplung der Anodensignale die Differenz zwischen Signal- und Referenzdraht mittels eines Pulstransformators gebildet. Sowohl die Signale aus den Anoden und der MCPs werden durch „fast-amplifier“ (FAMP) verstärkt [23], bevor sie zur NIM-Umwandlung und Zeitauslese kommen. Nach der Verstärkung laufen die Signale in CFDs („Constant Fraction Discriminatoren“), die digitale NIM-Ausgangssignale fast unabhängig von der Pulshöhe (einstellbare Grenze) der eingehenden Analogsignale liefern [24]. Anschließend gelangen die NIM-Signale in einen TDC („Time-to-Digital Converter“) (TDC8HP [25]), der die digitalen Signale kontinuierlich aufnimmt. Mit einem Triggersignal können die Signale gruppiert werden. In diesem Experiment wurde

als Triggersignal bis auf wenige Ausnahmen das MCP-Signal des Ionendetektors verwendet und es wurden die Signale ab dem Triggerzeitpunkt von  $-10 \mu\text{s}$  bis  $+10 \mu\text{s}$  aufgezeichnet.



**Abbildung 3.8:** Schematischer Signalverlauf. Die Signale aus den Anoden und der MCPs werden nach ihrer Auskopplung verstärkt und in einem CFD in NIM-Signale umgewandelt. Danach werden sie mit einem TDC aufgezeichnet. Abbildung entnommen aus [7] und bearbeitet.

### 3.3 Datenanalyse

Während der Messung (online) findet eine vorläufige Analyse der Messdaten mit dem Datenaufnahmeprogramm COBOLD statt. Die Ereignisse werden mit diesem Programm im „Listmode“-Verfahren Event für Event gespeichert, was eine nachträgliche Bearbeitung

der Rohdaten am Computer zulässt.

### 3.3.1 Rekonstruktion der Koordinaten

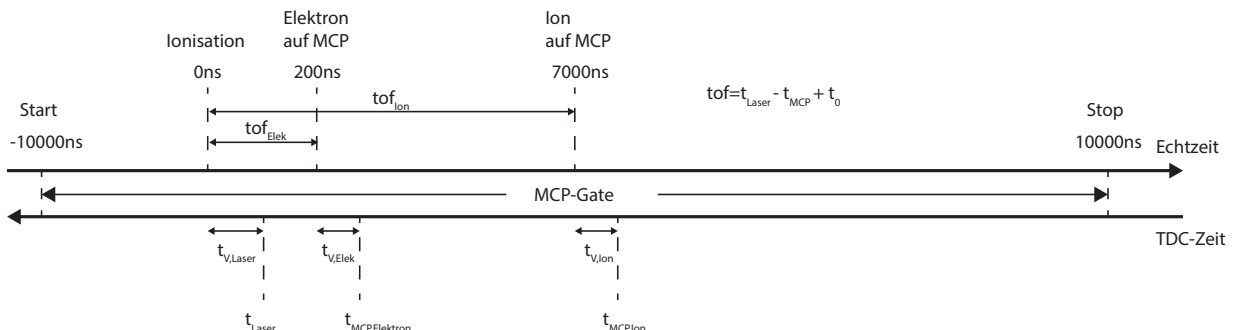
Alle Informationen der experimentellen Daten sind als Zeiten kodiert. Für eine spätere Berechnung der Impulse müssen zuerst die Auftrefforte und Flugzeiten aus den Rohdaten rekonstruiert werden. Ein Ereignis wird durch das MCP-Signal getriggert und es werden die Zeiten des TDC's in einem Fenster von  $10 \mu\text{s}$  aufgenommen. Folgende Zeiten sind für jedes einzelne Ereignis aufgezeichnet:

1. Ein kleiner Teil des durch einen dielektrischen Spiegel transmittierten Lichts trifft auf eine Photodiode und erzeugt das Laserpulssignal  $t_{\text{Laser}}$ . Der Laserpuls trifft auf das Target und Elektronen und Ionen entstehen.
2. Das Fragment trifft den Detektor und das MCP-Signal  $t_{\text{MCP}}$  wird generiert. Die dabei entstehende Elektronenwolke trifft auf die Anode.
3. Die auf den Delaylines propagierenden Elektronen erreichen die Drahtenden (1,2) der Layer (u,v,w) zu den Zeitpunkten  $t_{u,1}, t_{u,2}, t_{v,1}, t_{v,2}, t_{w,1}, t_{w,2}$ .

Die Flugzeiten und Auftrefforte der Fragmente werden durch eine modifizierte Version des C++-basierten Programms „lmf2root“ von Achim Czasch, Till Jahnke und Markus Schöffler berechnet. Es ermöglicht durch Verwendung verschiedener Methoden selbst bei Doppelhitereignissen und bei fehlenden Zeitsignalen, die Koordinaten teilweise noch zu rekonstruieren.

#### Flugzeit

Die Flugzeit ( $\text{tof} = \text{time of flight}$ ) eines Fragments ist die Differenz zwischen dem Entstehungszeitpunkt und dem Auftreffzeitpunkt auf dem Detektor. In Abbildung 3.9 ist eine Gegenüberstellung der Ereignisse in Echtzeit und den aufgenommenen Ereignissen auf der TDC-Zeitachse zu sehen. Bis auf einen konstanten Versatz  $\Delta t_0$ , welcher durch die Laufzeit



**Abbildung 3.9:** Schematische Darstellung der Ereignisse auf der wirklichen Zeitskala und auf der TDC-Zeitskala. Abbildung basierend auf [7].

des Signals in den Kabeln bedingt ist, entspricht die Geburtszeit des Fragments dem Signal der Photodiode. Die Flugzeit ist

$$tof = t_{Laser} - t_{MCP} + t_0. \quad (3.3)$$

### Auftreffort

Der Auftreffort der Teilchen berechnet sich im Koordinatensystem der Hexanode (u,v,w) durch die Differenz der Signallaufzeiten auf den Anodendrähten:

$$u = u_{scale} \cdot (t_{u,1} - t_{u,2}) \quad (3.4)$$

$$v = v_{scale} \cdot (t_{v,1} - t_{v,2}) \quad (3.5)$$

$$w = w_{scale} \cdot (t_{w,1} - t_{w,2}) + V_w. \quad (3.6)$$

In den Gleichungen sind  $u_{scale}, v_{scale}$  und  $w_{scale}$  die Skalenfaktoren, die die Beziehung der Zeiten in  $ns$  und der Orte in  $mm$  herstellen und  $V_w$  ist die Verschiebung der w-Ebene. Die Koordinatentransformation der um  $60^\circ$  zueinander gedrehten Drahtebenen in das kartesische Koordinatensystem wird über den Zusammenhang,

$$X_{uv} = u - x_0 \quad (3.7)$$

$$Y_{uv} = \frac{1}{\sqrt{3}}(u - 2v) - y_0 \quad (3.8)$$

$$X_{uw} = u - x_0 \quad (3.9)$$

$$Y_{uw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(2w - u) - y_0 \quad (3.10)$$

$$X_{vw} = (v + w) - x_0 \quad (3.11)$$

$$Y_{vw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(w - v) - y_0 \quad (3.12)$$

beschrieben. Mit  $x_0$  und  $y_0$  kann der Ortsnullpunkt kalibriert werden. Die Hexanode gibt redundante Informationen, wodurch der Ort des Teilchens bei Verlust der Signale einer Ebene immer noch rekonstruierbar ist.

### Zeitsummen

Die Summenlaufzeiten sind für jede Ebene wegen der festen Drahtlänge  $l$  und der konstanten Signalgeschwindigkeit  $v_{Sig}$  konstant ( $t_{sum} = l/v_{Sig} = const.$ ). Treffen Signale innerhalb kürzester Zeit auf den Detektor, tritt eine Signalvermischung auf und die Zuordnung der Signale zu den einzelnen Treffern wird schwierig. Zur Rekonstruktion werden alle möglichen Kombinationen der Signale verglichen und diejenigen herausgefunden, welche die zu der jeweiligen Drahtebene passende Zeitsumme haben. Auch werden Fenster um die korrekte Zeitsumme gesetzt, um schlechte Signale herauszufiltern.



### 3.3.2 Berechnung der Impulse

Mit Hilfe der rekonstruierten Flugzeiten und Auftrefforte für die Ereignisse lassen sich mit Kenntnis der Spektrometergeometrie und der angelegten elektrischen ( $\vec{E}$ ) und magnetischen ( $\vec{B}$ ) Felder die Impulse der Fragmente bestimmen. Die auf die Fragmente wirkende Kraft  $\vec{F}$  ergibt sich aus

$$\vec{F} = \vec{F}_E + \vec{F}_L \quad (3.13)$$

$$= q(\vec{v} \times \vec{B} + \vec{E}) \quad (3.14)$$

$$= q \begin{pmatrix} v_y B_z - v_z B_y + E_x \\ v_z B_x - v_x B_z + E_y \\ v_x B_y - v_y B_x + E_z \end{pmatrix} \quad (3.15)$$

Die Felder  $\vec{E}$  und  $\vec{B}$  wirken entlang der Flugzeitrichtung  $z$ , weshalb sich Gleichung 3.13 durch

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ E \end{pmatrix} \text{ und } \vec{B} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ B \end{pmatrix} \quad (3.16)$$

zu

$$m \begin{pmatrix} \ddot{x} \\ \ddot{y} \\ \ddot{z} \end{pmatrix} = q \begin{pmatrix} \dot{y}B \\ -\dot{x}B \\ E \end{pmatrix} \quad (3.17)$$

vereinfachen lässt, wobei in der letzten Gleichung  $\vec{F} = m_e \vec{a}$  und  $q = e$  gesetzt wurde.

#### Elektronenimpulse

Als Lösung der gekoppelten Differentialgleichung 3.17 ergibt sich unter Berücksichtigung der Anfangsbedingungen  $x(0) = y(0) = 0$  [26, 27]

$$x(t) = \frac{v_y}{\omega}(1 - \cos(\omega t)) + \frac{v_x}{\omega}\sin(\omega t) \quad (3.18)$$

$$y(t) = \frac{v_x}{\omega}(\cos(\omega t) - 1) + \frac{v_y}{\omega}\sin(\omega t) \quad (3.19)$$

$$z(t) = \frac{e}{2m_e}E_z t^2 + v_z t \quad (3.20)$$

Die Bewegung des Elektrons in x-y-Richtung entspricht einer Zykloidentrajektorie mit der Zyklotronfrequenz  $\omega$ . Durch Auflösen nach den Anfangsgeschwindigkeiten und Multi-

plikation mit der Elektronenmasse  $m_e$  findet sich

$$p_x = \frac{m_e(-xa - by)}{a^2 + b^2} \quad (3.21)$$

$$p_y = \frac{m_e(xb - ay)}{a^2 + b^2} \quad (3.22)$$

$$p_z = \frac{m_e s_e}{t_e} - \frac{eE_z}{2} t_e \quad (3.23)$$

mit den Abkürzungen

$$a = \frac{1 - \cos(\omega t)}{\omega}, b = \frac{\sin(\omega t)}{\omega}, \omega = \frac{e}{m_e} B. \quad (3.24)$$

In der Gleichung für die  $p_z$ -Komponente 3.23 stellen  $t_e$  die Flugzeit und  $s_e$  die Beschleunigungsstrecke des Elektrons dar.

### Ionenimpulse

Der Einfluss des Magnetfeldes auf die Ionen ist wegen ihrer großen Masse vernachlässigbar und die Bewegungsgleichung 3.17 kann vereinfacht werden zu

$$m_r \begin{pmatrix} \ddot{x} \\ \ddot{y} \\ \ddot{z} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ qE \end{pmatrix}, \quad (3.25)$$

mit der Ionenmasse  $m_r$  und der Ladung des Ions  $q$ . Da keine Felder in x- und y-Richtung wirken, lassen sich die Trajektorien als gleichförmige Bewegung beschreiben. Der Impuls des Ions ist dann bei Umkehrung von

$$x = \frac{p_x}{m_r} t_r \quad (3.26)$$

$$y = \frac{p_y}{m_r} t_r \quad (3.27)$$

$$s_r = \frac{E q t_r^2}{2 m_r} - \frac{p_z}{m_r} t_r \quad (3.28)$$

gegeben durch

$$p_x = \frac{m_r x}{t_r} \quad (3.29)$$

$$p_y = \frac{m_r y}{t_r} \quad (3.30)$$

$$p_z = \frac{m_r s_r}{t_r} - \frac{qE}{2} t_r. \quad (3.31)$$

### 3.3.3 Kalibrierung

Um eine möglichst vollständige Rekonstruktion der Ereignisse zu ermöglichen, müssen die Detektoren kalibriert werden. Die einzustellenden Parameter und die Kalibrierungstechniken sollen im Folgenden kurz erläutert werden.

#### Skalenfaktoren

Mittels der Skalenfaktoren werden die gemessenen Zeiten der einzelnen Drahtebenen von ns in mm umgerechnet. Die relativen Werte zueinander werden automatisch durch einen Algorithmus, entwickelt von A. Czasch [28], bestimmt, während die absoluten Werte mithilfe des bekannten MCP-Durchmessers berechnet werden.

#### Verschiebung und Breite der Zeitsummen

Damit die Rekonstruktion der Daten möglichst gut funktioniert, müssen die Zeitsummen auf Null geschoben und ihre Breite korrekt angegeben werden. Es ist dafür sinnvoll, dies in zwei Schritten zu erledigen: Zuerst die Werte anhand der vorsortierten Daten eingeben, dann die Rekonstruktion für kurze Zeit laufen lassen, welche die unter Umständen stark gebogene Zeitsummenkurve (Zeitsumme gegen Laufzeit) auf null zieht. Die so gewonnene Zeitsummenkurve ist deutlich schmaler, weshalb der Wert für die Breite noch weiter verringert werden kann.

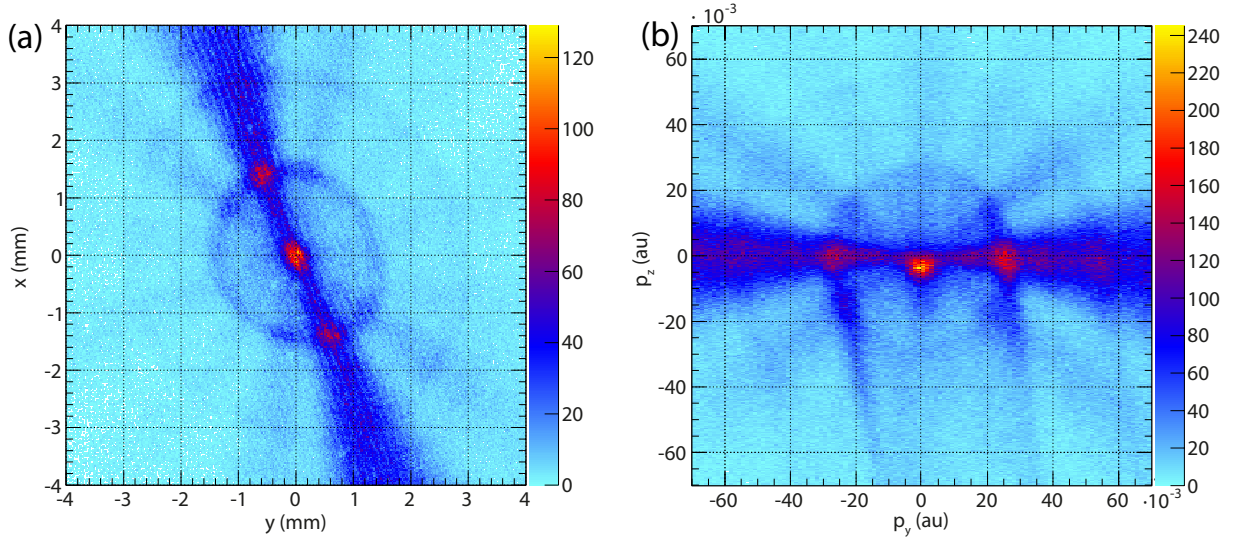
#### Verschiebung der dritten Drahtebene

Der Detektormittelpunkt ist bereits durch die u- und v-Ebenen definiert, sodass meistens der Mittelpunkt der dritten Ebene nicht mit dem Detektormittelpunkt übereinstimmt. Deshalb wird, wie in Gleichung 3.6 zu sehen, eine Verschiebung  $V_w$  eingestellt.

#### Verschiebungen der Orte x, y und der Zeit t

Der Ursprung des Ortskoordinatensystems wurde so eingestellt, dass der Peak in der Mitte der Impulsverteilung der Elektronen bei einer Messung mit linearem Licht am Ort null liegt (Abb. 3.10(a)). Die Flugzeitmessung erfolgt, wie in Abb. 3.9 dargestellt, relativ zum Puls einer Photodiode. Aufgrund verschiedener Signallaufzeiten, muss daher der Zeitnullpunkt kalibriert werden. Die Kalibrierung auf den zentralen Peak ist in diesem Fall nicht sinnvoll, da seine Position nicht der Zeit null entspricht (Details dazu in Kapitel 6). Drei in der Auswertung einstellbare Parameter beeinflussen die Kalibrierung in Flugzeitrichtung: die Spektrometerlänge, das Spektrometerfeld und der Zeitnullpunkt. Die Spektrometerlänge wurde vorher ausgemessen und in der Kalibrierung konstant gehalten. Das elektrische Feld im Spektrometer wurde mithilfe des Argon-Dimer-Aufbruchs bestimmt (s. Abschnitt 3.3.3). Der Flugzeitnullpunkt resultiert aus der Lage des ersten Knotens des Wigglespektrums (Abb. 3.11). Dieser kann durch grobe Abschätzung der Flugzeit bestimmt werden.

Eine noch feinere Kalibrierung des Flugzeitnullpunktes wurde mittels der Elektronenimpulsverteilung linearen Lichts durchgeführt. Die Nullpunktverschiebung wurde so eingestellt, dass anstelle des zentralen Peaks die Elektronenimpulsverteilung der Ionisation mit linearem Licht entlang Impuls null liegt (Abb. 3.10(b)). Die genaue Bestimmung des Nullpunktes war vor allem für die Ergebnisse in Kapitel 6 relevant, weshalb die Methode auch dort genauer beschrieben wird.



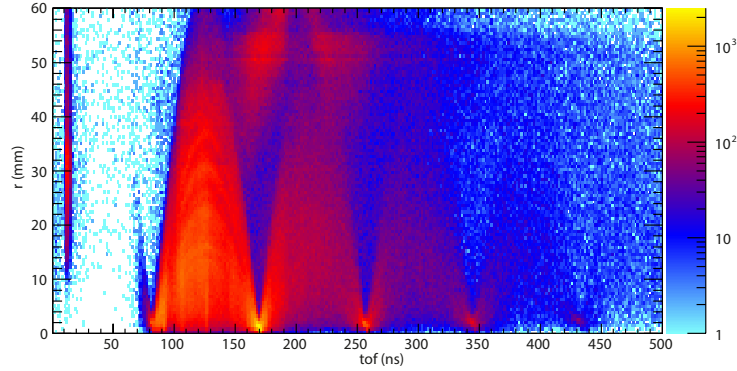
**Abbildung 3.10:** (a) Der auf null geschobene zentrale Peak zur Eichung der Ortsoffsets des Elektronendetektors. In (b) wird der Flugzeitnullpunkt so eingestellt, dass die Null entlang der Elektronenverteilung der Ionisation mit linearem Licht liegt.

### Magnetisches Feld

Entsprechend den Gleichungen aus Abschnitt 3.3.2 vollführen die Elektronen eine Zykloidenbahn auf ihrem Weg zum Detektor. Wenn die Flugzeit eines Elektrons  $t_{tof}$  der Zyklotronperiode

$$T_{Zyk} = \frac{2\pi}{|B|} \frac{m_e}{q_e} \quad (3.32)$$

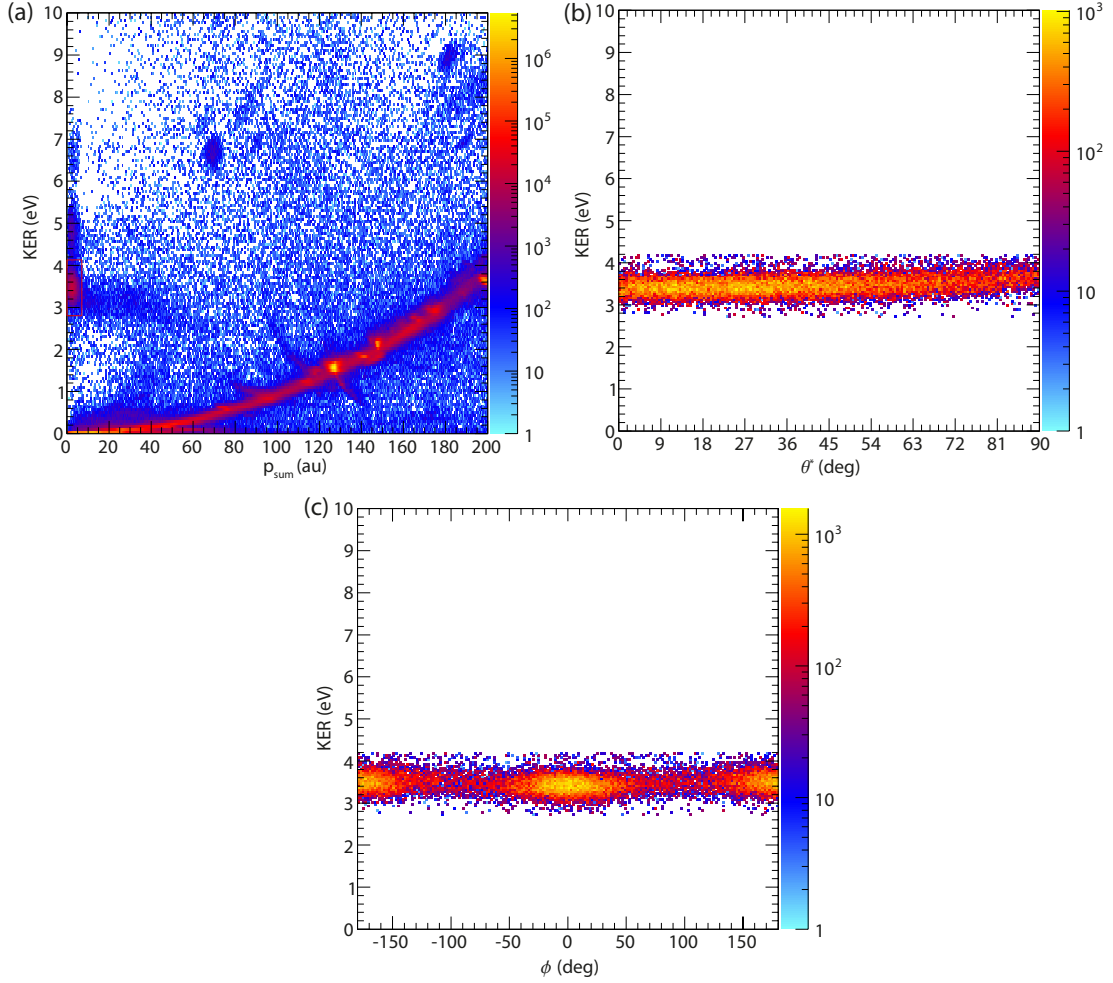
oder einem Vielfachen davon entspricht, treffen alle Elektronen mit dieser Flugzeit auf den gleichen Ort auf dem Detektor. Diese schmalen Verteilungen auf dem Detektor werden „Wiggles“ genannt. Je weiter die Flugzeiten der Elektronen von  $T_{Zyk}$  entfernt sind, desto mehr werden sie aufgeweitet. Das Magnetfeld kann durch den Abstand der Knoten aus Abb. 3.11 bestimmt werden.



**Abbildung 3.11:** In diesem Histogramm ist die Flugzeit der Elektronen gegen den Radius des Detektors aufgetragen. Wegen der Zykloidenbahn, welche die Elektronen im Magnetfeld durchlaufen, landen sie bei bestimmten Flugzeiten am gleichen Ort auf dem Detektor. Das Magnetfeld lässt sich aus dem Abstand der Knoten bestimmen.

### Elektrisches Feld

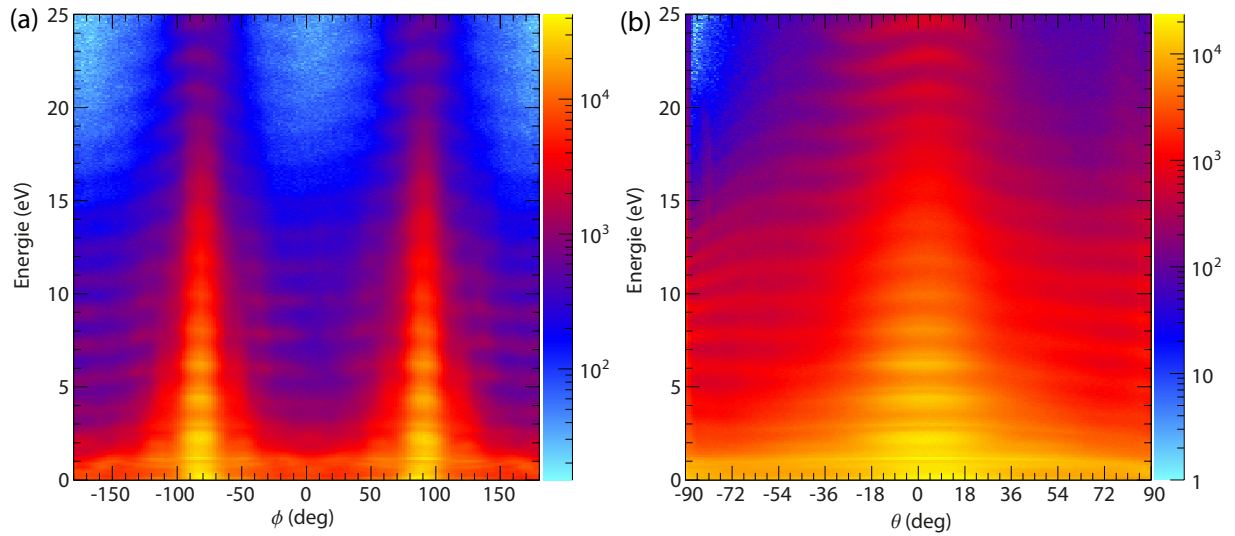
Das elektrische Feld des Spektrometers wurde mithilfe der bekannten Energie der Coulomb-Explosion von Argon Dimeren von  $E_{Ar} = 3,577$  eV [29] kalibriert. Bei Auftragen des Summenimpulses  $p_{sum} = |\vec{p}_1 + \vec{p}_2|$  beider  $Ar^+$ -Fragmente gegen den „kinetic energy release“ ( $KER = E_1 + E_2$ ) zeigt sich der Aufbruchskanal der Dimere in Form einer Insel (rotes Rechteck in Abb. 3.12(a)). Bei Auswahl dieser Ereignisse wird der Winkel zwischen Fragmentationsrichtung und Feldrichtung des Spektrometers  $\theta^* = \arccos(|p_z|/|\vec{p}|)(180/\pi)$  gegen den  $KER$  nur für den Dimerkanal aufgezeichnet (Abb. 3.12(b)). Durch Variieren des elektrischen Feldes werden die Ereignisse am rechten Rand des Plots aus Abb. 3.12(b) nahe  $\theta = 90^\circ$ , welche entlang der Flugzeitrichtung liegen, auf die bekannte Energie  $E_{Ar}$  geschoben. Die Energien bei kleinen  $\theta$  werden aus der Ortsinformation berechnet, weshalb diese durch den Skalenfaktor so geschoben werden können, dass sich in Abb. 3.12(b) die gewünschte horizontale Linie ergibt und damit der  $KER$  unabhängig von  $\theta$  ist. Die Abhängigkeit des  $KER$  vom Winkel  $\phi = \arctan(p_x/p_y)(180/\pi)$  in der Detektorebene (Abb. 3.12(c)) wird verwendet, um die Skalenfaktoren zueinander einzustellen.



**Abbildung 3.12:** (a) Der Summenimpuls  $p_{sum} = |\vec{p}_1 + \vec{p}_2|$  gegen den  $KER = E_1 + E_2$ . Die durch das rote Rechteck markierte Insel entspricht der Coulomb-Explosion von  $Ar^+ + Ar^+$ . Die Abhängigkeiten des  $KER$  von den Winkeln  $\theta$  (b) und  $\phi$  (c) für die in (a) ausgewählten Ereignisse. Durch Einstellen des elektrischen Feldes kann der  $KER$  auf  $E_{Ar} = 3,577$  eV geschoben werden. Mittels der Skalenfaktoren werden die Linien in (b) und (c) bei Winkel  $\theta = 0$  und  $\theta = 180^\circ$  möglichst gerade gemacht.

### Skalenfaktoren des Elektronendetektors

Mithilfe der ATI-Ringe konnten die Skalenfaktoren für den Elektronendetektor kalibriert werden. In Abhängigkeit der Elektronenenergie von den Winkeln  $\phi$  und  $\theta$  müssen sie möglichst gerade Linien bilden (Abb. 3.13), weil sie im Impulsraum kugelförmig sind. Da magnetisches und elektrisches Feld schon mit den in den vorigen Kapiteln beschriebenen Methoden bestimmt wurden, bleiben hier nur noch die Skalenfaktoren als freie Parameter übrig.

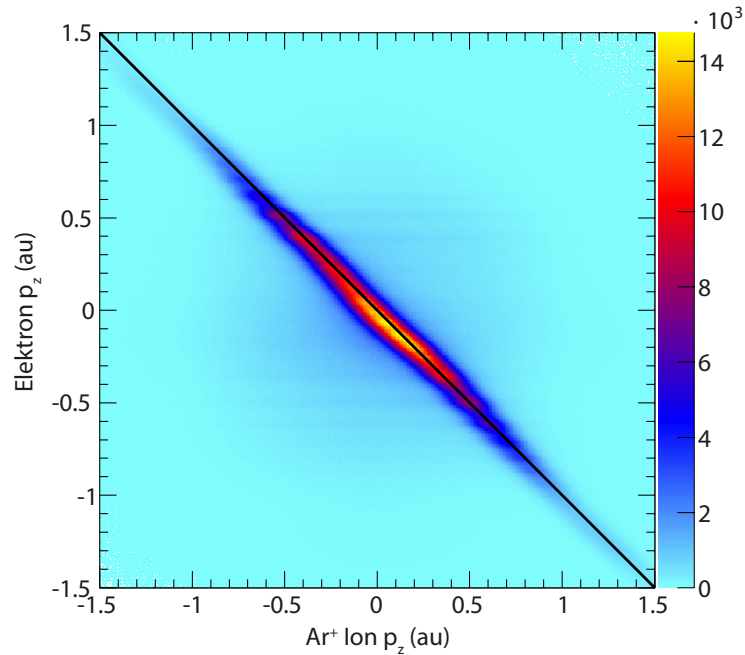


**Abbildung 3.13:** Die Winkel  $\phi$  (a) und  $\theta$  (b) sind gegen die Elektronenenergie aufgetragen. Idealerweise sollten die Linien nach Anpassen der Detektor-Skalenfaktoren gerade und nicht mehr gebogen sein, was jedoch nicht ganz erreicht wurde. Dies könnte beispielsweise durch kleinere Magnetfeldinhomogenitäten ausgelöst werden.

Als weitere Überprüfung, ob die Kalibrierung korrekt ist, kann die Impulserhaltung bei der Einfachionisation ausgenutzt werden. Der Elektronenimpuls muss gerade dem entgegengesetzten Ionenimpuls entsprechen

$$p_{z,elec} = p_{z,ion}. \quad (3.33)$$

Bei Auftragen dieser beiden Impulse muss sich eine diagonale Verteilung mit der Steigung -1 ergeben (Abb. 3.14).

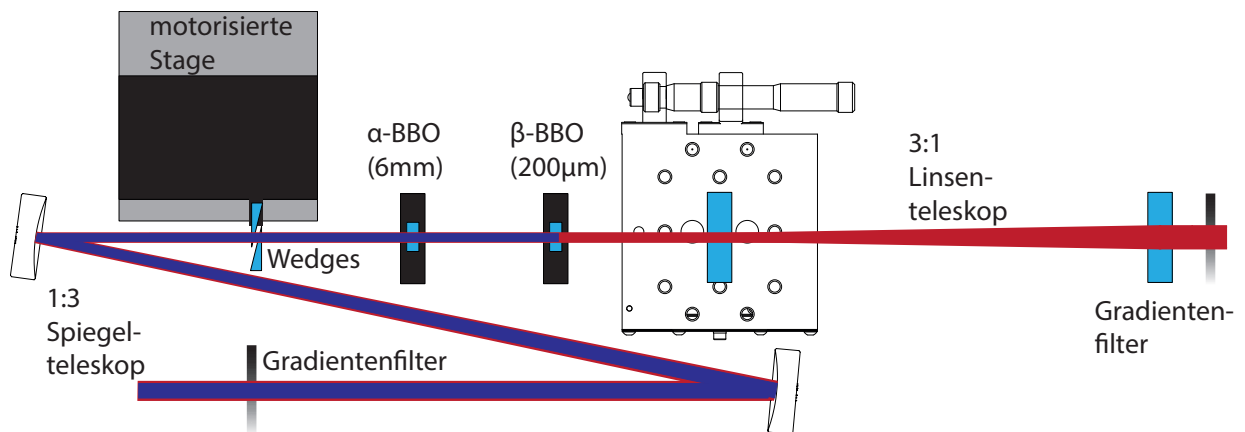


**Abbildung 3.14:** Ionen- gegen Elektronenimpuls in Flugzeitrichtung für den Einfachionisationskanal  $Ar^+ + e^-$ . Aus Impulserhaltungsgründen müssen die Ionen- und Elektronenimpulse antiparallel sein und den gleichen Betrag haben.

### 3.4 Orthogonal Two-Color (OTC)

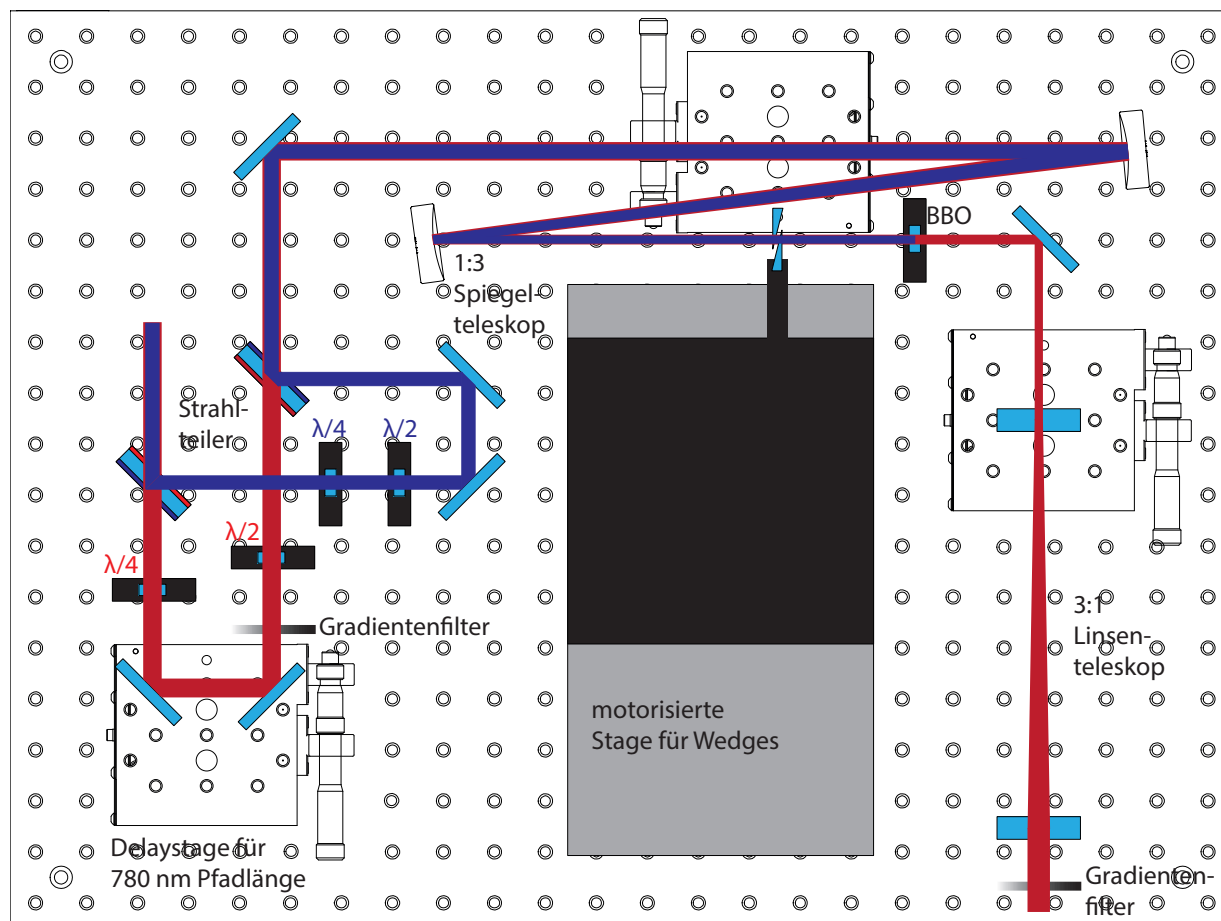
Der Strahlengang ist in Abbildung Abb. 3.15 dargestellt. Das orthogonal polarisierte zweite Harmonische Feld (390 nm) wird in einem  $\beta$ -Bariumboratkristall ( $\beta$ -BBO) der Dicke 200  $\mu\text{m}$  durch Frequenzverdopplung des 780 nm Laserpulses erzeugt. In der weiteren Versuchsanordnung werden die Strahlen nie räumlich getrennt, d.h. sie verlaufen kollinear. Ein 6 mm dicker  $\alpha$ -BBO (X-cut) und ein paar Wedges (dt. Keile) aus Quarzglas (Dicke 2,2 mm) dienen zur Erhaltung des zeitlichen Überlapps zwischen den Pulsen. Wegen des vielen Glases im Strahlenverlauf verlängert sich der 780 nm Puls auf etwa 55 fs und der 390 nm Puls auf ca. 70 fs. Mithilfe der Wedges ist es außerdem möglich, die Phase zwischen den beiden Pulsen zu kontrollieren. Da die Erzeugung eines zweiten Harmonischen Feldes im BBO-Kristall ein nichtlinearer Prozess zweiter Ordnung ist, kann das Intensitätsverhältnis zwischen den beiden Farben mittels eines Gradientenfilters im 780 nm-Pfad ganz zu Anfang des Aufbaus reguliert werden. Die absoluten Intensitäten sind mit einem weiteren Gradientenfilter am Ende des Aufbaus einstellbar.





**Abbildung 3.15:** Für die Frequenzverdopplung im  $\beta$ -BBO wurde der Strahl mittels eines Linsenteleskops ( $f_1=300$  mm,  $f_2=-100$  mm) von 8 mm auf 2,7 mm verkleinert. Der zeitliche Abstand zwischen den Pulsen wird grob mit einem  $\alpha$ -BBO verringert. Zur feinen Phasenkontrolle werden zwei Wedges verwendet. Ein darauf folgendes 1:2 Spiegelteleskop ( $f_1=-300$  mm,  $f_2=600$  mm) vergrößert den Strahl auf etwa 5,5 mm.

### 3.5 Counter-rotating two-color (CRTC)



**Abbildung 3.16:** Der Laserstrahl (780 nm, 40 fs FWHM) wird zuerst durch ein 3:1 Linsenteleskop ( $f_1=300$  mm,  $f_2=-100$  mm) von 8 mm Strahldurchmesser auf 2,7 mm verkleinert, um in einem  $\beta$ -Bariumboratkristall der Dicke  $200 \mu\text{m}$  ein zweites Harmonisches Feld (390 nm) zu erzeugen. Wie beim OTC-Aufbau werden Wedges zum Einstellen der Phase verwendet. Anschließend werden beide Strahlen durch ein 1:2 Spiegelteleskop ( $f_1=-300$  mm,  $f_2=600$  mm) vergrößert und gelangen durch einen Strahlteiler auf verschiedene Pfade. Der 780 nm Anteil wird durch einen verstellbaren Filter zum kontrollierten Abschwächen der Intensität, ein Verschiebetisch für das Finden des zeitlichen Überlapps der beiden Farben und durch ein  $\lambda/2$ - und ein  $\lambda/4$ -Wellenplättchen zum Einstellen der Elliptizität geleitet. Auf dem 390 nm Pfad befinden sich ebenfalls ein  $\lambda/2$ - und ein  $\lambda/4$ -Wellenplättchen. Durch die Wellenplättchen werden die Polarisationen der Felder so eingestellt, dass sie entgegengesetzt zirkular polarisiert sind. Anschließend werden beide Strahlen in einem Beamcombiner zusammengeführt.

Der Laserstrahl (780 nm, 40 fs FWHM) wird durch ein 3:1 Linsenteleskop ( $f_1=300$  mm,  $f_2=-100$  mm) von 8 mm Strahldurchmesser auf 2,7 mm verkleinert, um in einem  $\beta$ -Bariumboratkristall der Dicke  $200 \mu\text{m}$  ein zweites Harmonisches Feld (390 nm) zu erzeugen

(Abb. 3.16). Das 1:3 Spiegelteleskop vergrößert beide Strahlen, damit sie einerseits keine Schäden an den Wellenplättchen verursachen und andererseits stärker in der Kammer fokussiert werden. Der 390 nm Strahl ist zwar wegen des nichtlinearen Effektes bei seiner Erzeugung insgesamt etwas kleiner als der fundamentale 780 nm Strahl, kann aber von dem in der Kammer befindlichen Spiegel wegen seiner kleineren Wellenlänge besser fokussiert werden. So wird davon ausgegangen, dass die Foki beider Farben wegen dieser sich gegenseitig kompensierenden Effekte gleich groß sind.

Um die Leistung (Intensität) beider Farben unabhängig voneinander festzulegen, wird zuerst die Leistung des 390 nm Strahls über die Intensität des 780 nm Strahls im BBO eingestellt. Dies wird mit einem Gradientenfilter zu Anfang des Aufbaus erreicht. Die Leistung des 780 nm Anteils wird mittels eines Gradientenfilters nach dem Strahlteiler justiert. Ein großer Vorteil dieser Methode ist die Einfachheit und die große Flexibilität beim Aufbauen der Komponenten. Ein Nachteil könnte sein, dass die Abschwächung über den Strahlquerschnitt wegen des Gradientenfilters inhomogen geschieht, was negative Auswirkungen für das Strahlprofil im Fokus haben könnte. Außerdem könnte das Ändern der Leistung des 780 nm Strahls im BBO nicht nur die Leistung des 390 nm Anteils verändern, sondern auch die Strahlgröße und auch das Strahlprofil im Fokus.

Zur groben Einstellung der Phase zwischen den Feldern beider Farben kommt ein manueller Verschiebetisch im 780 nm-Arm zum Einsatz. Die einfachste Möglichkeit, den zeitlichen Überlapp zu finden, ist durch Bewegen des Verschiebetischs auf die Ereignisrate ( $\propto$  Ionisationsrate) im COLTRIMS Experiment zu maximieren. Die Rate ist sehr empfindlich auf den Überlapp, da sie nichtlinear von der elektrischen Feldstärke abhängt (s. Abschnitt 2.3). Der grobe zeitliche Überlapp muss dennoch vorher schon sehr gut abgeschätzt worden sein und muss vorsichtig mit dem Verschiebetisch eingestellt werden, da er etwa nur 100 fs lang ist, was einer Strecke zum Einstellen mit dem Verschiebetisch von 30  $\mu\text{m}$  entspricht.

Die Justierung der Polarisation erfolgt durch jeweils ein  $\lambda/2$ - und  $\lambda/4$ -Wellenplättchen. Das  $\lambda/2$ -Wellenplättchen wäre zum Einstellen eines vorher optimalen Strahls nicht notwendig, gibt aber bei einem zuvor nicht perfekt p- oder s-polarisierten Eingangsstrahl einen zusätzlichen kontrollierbaren Freiheitsgrad. Außerdem kann durch leicht fehlerhafte Reflexionen an den Elementen nach dem  $\lambda/4$ -Wellenplättchen eine Vorkompensierung der Polarisation notwendig sein. Die Achse der Ellipse muss in diesem Fall auch durch das  $\lambda/2$ -Wellenplättchen korrekt eingestellt werden. Auch ist es mit den  $\lambda/2$ -Wellenplättchen möglich, die Hauptachsen der Polarisationsellipsen der zwei Farben gegeneinander zu drehen.

# Kapitel 4

## Simulation der Tunnelionisation

Ein sehr intuitives Verständnis der Ionisation in starken Laserfeldern bietet das Simple-Man-Modell [30], in welchem die getunnelten Elektronen im Laserfeld entlang klassischer Bahnen oszillieren. Mit diesem Modell gelang u.a. die Herleitung der „cut-off-laws“ zur Bestimmung der maximalen Energie der direkten und rückgestreuten Elektronen. Coulomb- sowie Quanteneffekte sind jedoch nicht im Simple-Man-Modell enthalten.

Durch Classical-Trajectory Monte Carlo (CTMC) Simulationen [31], basierend auf den Tunnelwahrscheinlichkeiten und Startbedingungen der ADK-Theorie und der anschließenden klassischen Propagation im kombinierten Coulomb- und Laserfeld, kann die Ionisation in starken Laserfeldern quantitativ sehr gut beschrieben werden.

Die CTMC-Simulation ist ein adiabatisches Modell, bei dem angenommen wird, dass das Elektron durch eine statische oder quasistatische Barriere tunnelt. Im nichtadiabatischen Fall nimmt das Elektron während des Tunnelns durch eine zeitabhängige Barriere Energie auf, was in einem Startimpuls parallel zum Feldvektor resultieren kann. Die Coulomb-corrected strong-field-approximation (CCSFA) [32, 33, 9] und das Lösen der zeitabhängigen Schrödingergleichung (TDSE) [34, 35] berücksichtigt nichtadiabatische Effekte, wobei Letzteres die genaueste Beschreibung der Dynamik der Ionisation von Atomen in starken Laserfeldern liefert. Der numerische Aufwand ist jedoch vor allem für nicht linear polarisierte elektrische Felder wegen der großen Exkursionsamplituden der Elektronen und dem deswegen notwendigen großen räumlichen Gitter sehr hoch. Außerdem ist es oft schwierig, ein physikalisches Verständnis für die Ergebnisse einer TDSE-Lösung zu erhalten, da die Herkunft bestimmter spektraler Merkmale verborgen bleibt.

Eine Erweiterung der CTMC-Simulation stellt die semiklassische Quantum-Trajectory Monte Carlo (QTMC) Simulation [36] dar, welche den Feynmanschen Pfadintegralformalismus zur Nachbildung von Interferenzen beinhaltet. Die Stärke der QTMC-Simulation liegt nicht unbedingt in der exakten Vorhersage der finalen Impulsverteilungen, sondern in der Möglichkeit der Identifikation verschiedener Klassen von Trajektorien.

Die in diesem Kapitel beschriebene QTMC-Simulation wird in unterschiedlichen Varianten für die Erklärung der Effekte in den Kapiteln 7, 8 und 9 herangezogen. Für Kapitel 7 konnte der Ursprung der in der Messung beobachteten Interferenzen durch die semiklassische Rechnung unter Berücksichtigung quantenmechanischer Effekte bestimmt werden.

Für eine Untersuchung der Coulomb-Fokussierung im OTC-Feld in Kapitel 8 war die lange Propagation der Elektronen nach dem Laserpuls von großer Bedeutung, da ihre Endimpulse sehr klein waren. Zuletzt wurden die gemessenen Propellerimpulsverteilungen aus Kapitel 9 für verschiedene Intensitätsverhältnisse mit denen der Rechnungen verglichen und einige Eigenschaften der Impulsverteilungen identifiziert.

Um das  $1/r$ -Potential des verbleibenden Ions simulieren zu können, wurde die Simulation in drei Raumrichtungen (3D) durchgeführt. Die Informationen jeder gerechneten Trajektorie werden in einer ASCII Datei gespeichert und in einem Analyseschritt mithilfe des ROOT Frameworks in Histogramme gefüllt und dargestellt.

## 4.1 Anfangsbedingungen

Die drei Anfangsbedingungen Tunnelausgangsort, Ionisationswahrscheinlichkeit und senkrechte Anfangsimpulsverteilung werden durch die ADK-Theorie vorgegeben. Wie bereits in Abschnitt 2.3 beschrieben, starten die Elektronen in einem von Betrag und Richtung des Feldvektors abhängenden Abstand (Gl. 2.12).

Die getunnelten Elektronen haben eine gaußglockenförmige 2D Anfangsimpulsverteilung senkrecht zum elektrischen Feldvektor. Sie werden innerhalb dieser Funktion nicht zufällig gestartet, sondern die Anfangsimpulse werden in einer 2D Ebene Schritt für Schritt abgerastert. Im Analyseschritt werden die berechneten Trajektorien mit

$$w_{init} \sim \frac{\sqrt{2I_p}}{|E|} e^{-\frac{\sqrt{2I_p}}{|E|} p_{start}^2} \quad (4.1)$$

gewichtet, wobei  $I_p$  das Ionisationspotential,  $|E|$  der Betrag des elektrischen Feldvektors und  $p_{start}$  der Wert des Anfangsimpulses ist. Nichtadiabatische Effekte, wie Anfangsimpulse parallel zum Feldvektor, werden hier im Gegensatz zu CCSFA und TDSE Rechnungen nicht berücksichtigt.

Die Ionisationswahrscheinlichkeit  $w_{ADK}$  wird auch erst im Zuge des Analyseschritts einbezogen. Unabhängig vom Betrag des elektrischen Feldvektors werden die Elektronen in äquidistanten zeitlichen Schritten gestartet und entsprechend  $w_{ADK}$  (Gl. 2.10) gewichtet.

Je nach Anforderungen wurde auch eine andere Möglichkeit zur Gewichtung der Trajektorien verwendet. Bei dieser Methode ist die Anzahl der startenden Elektronen direkt von der Ionisationswahrscheinlichkeit und der Anfangsimpuls Wahrscheinlichkeit abhängig. Diese Methode entspricht zwar eher der Realität, erfordert jedoch auch hohe Statistik bzw. lange Rechenzeiten, da ansonsten deutliche Artefakte in den Endimpulsspektren sichtbar sind. Im Analyseschritt muss anschließend nicht mehr mit  $w_{ADK}$  oder  $w_{init}$  gewichtet werden.

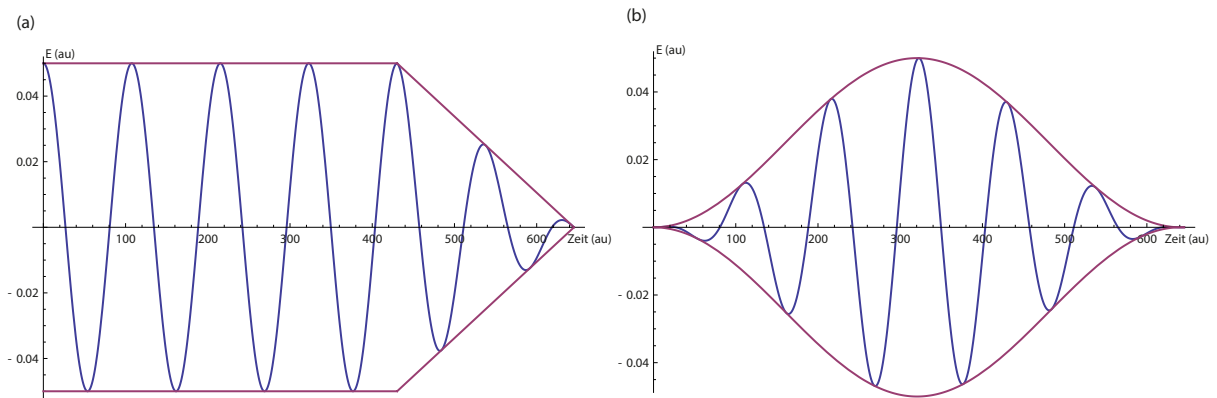
## 4.2 Propagation

Nach dieser Auswahl der Anfangsbedingungen wird die klassische Bewegung der Elektronen durch das kombinierte Laser- und Coulomb-Feld beschrieben. Die auf das Elektron in die

jeweilige Raumrichtung wirkende Kraft  $F_i$  ist durch

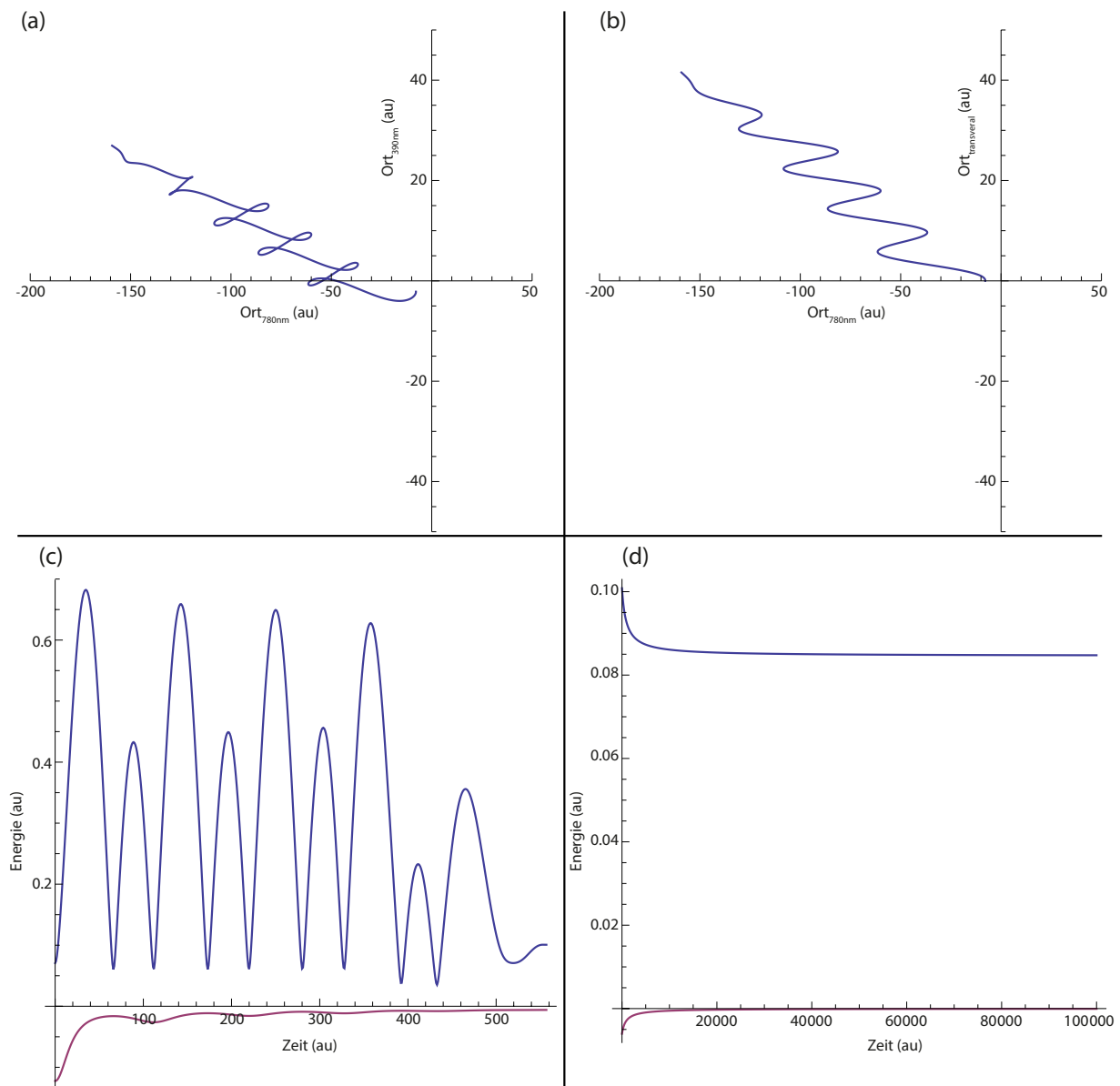
$$F_i = -E_i(t) - \frac{\partial V(x_1, x_2, x_3)}{\partial x_i} \quad (4.2)$$

gegeben. Der Laserpuls besteht aus sechs Perioden mit einer trapezförmigen Einhüllenden (4.1(a)). Die ersten vier Perioden haben eine konstante Amplitude, danach wird sie innerhalb zweier Perioden linear bis null heruntergefahren. Für wenige andere Rechnungen wurde eine  $\sin^2$ -Einhüllende verwendet 4.1(b).



**Abbildung 4.1:** Einhüllenden eines gerechneten Pulses mit sechs Schwingungen bei 780 nm.

Nachdem der Laserpuls vorbei ist, werden die Elektronen mit positiver Gesamtenergie noch  $10^{14}$  au (Zeit) propagiert bis der Einfluss des Coulomb-Potentials vernachlässigbar ist. Der Verlauf der Energie während und nach dem Laserpuls soll im Folgenden am Beispiel einer typischen Trajektorie im OTC-Feld dargestellt werden. Ihr Verlauf im Ortsraum während des Laserpulses ist in der Polarisationssebene in Abb. 4.2(a) und in der Ebene senkrecht dazu in Abb. 4.2(b) aufgetragen. Ihre kinetische (blau) und potentielle Energie (rot) während dieser Zeit sind in 4.2(c) gezeigt. Sobald der Laserpuls aus ist, geht die potentielle Energie asymptotisch gegen null und die kinetische Energie konvergiert gegen einen entsprechenden Wert (Abb. 4.2(d)).



**Abbildung 4.2:** Der Verlauf einer im OTC-Feld gerechneten Trajektorie mit den Startimpulsen  $\{p_{390nm,i}, p_{trans,i}\} = \{-0, 1; 0, 1\}$ . Die Amplituden der elektrischen Felder betragen  $\{E_{780nm}, E_{390nm}\} = \{0,063; 0,019\}$ . (a),(b) Oszillationsbewegung des Elektrons im kombinierten Laser- und Coulomb-Feld in der Polarisationssebene (a) und der Ebene senkrecht dazu (b). In (c) sind die während des Laserfeldes oszillierenden Energien (kinetisch  $\leftrightarrow$  blau, potentiell  $\leftrightarrow$  rot) gegen die Zeit aufgetragen. Für die Zeit nach dem Laserpuls (d) konvergieren die Energien.

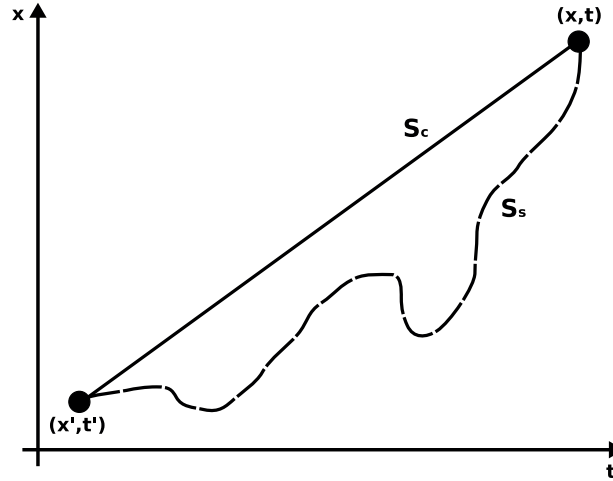
Das numerische Lösen der auftretenden Differentialgleichungen wird dabei durch das Programm Mathematica übernommen, in welchem der Lösungsalgorithmus automatisch ausgewählt wird.

### 4.3 Phase

Mittels der Feynman-Pfadintegralmethode kann die Phase für jede Elektronenrajektorie berechnet werden. Ohne auf mathematische Details einzugehen, soll im Folgenden der in der Simulation verwendete Ansatz der Pfadintegralmethode möglichst anschaulich angerissen werden [37]. Die Wahrscheinlichkeit  $P$  für die Bewegung eines Teilchens zwischen zwei Punkten in der Raum-Zeit  $(x,t)$  kann im Feynman-Pfadintegralformalismus durch

$$P(x : x' \rightarrow x'', t : t' \rightarrow t'') \propto \left| \sum_S e^{iS/\hbar} \right|^2 \quad (4.3)$$

beschrieben werden, wobei die Summe alle möglichen Raum-Zeit-Pfade von  $(x', t')$  nach  $(x'', t'')$  beinhaltet und  $S$  die Wirkung jedes Pfades darstellt. Für die QTMC-Simulation wird die Näherung gemacht, dass der Beitrag für alle Pfade bis auf den klassischen Pfad verschwindend gering ist (s. Abb. 4.3).



**Abbildung 4.3:** Ein Beispiel für ein Teilchen, welches sich in der Raum-Zeit von  $(x', t')$  nach  $(x, t)$  bewegt. Der klassische Pfad mit der stationären Wirkung  $S_c$  wird für die Simulation als einziger in Betracht gezogen. Alle nichtstationären Pfade  $S_s$  sind unphysikalisch im klassischen Sinne und werden für die Simulation vernachlässigt, obwohl sie zu Ergebnissen beitragen könnten, die quantenmechanische Effekte zeigen. Abbildung entnommen aus [37].

Die obige Summe aus allen Pfaden kann daher zu einem einzigen Beitrag reduziert werden, der nur die Wirkung des klassischen Pfades  $S_c$  enthält

$$P(x : x' \rightarrow x'', t : t' \rightarrow t'') \propto |e^{iS_c/\hbar}|^2. \quad (4.4)$$

Für den klassischen Pfad ist die Wirkung stationär, d.h.  $\delta S = 0$  und sie kann durch das Integral über die Lagrange-Funktion des Elektrons im Laser- und Coulomb-Feld geschrieben



werden:

$$S_c = \int_{t_0}^{t_1} L dt \quad (4.5)$$

$$= \int_{t_0}^{t_1} \left( \frac{\vec{v}^2(t)}{2} + \vec{E}(t) \cdot \vec{r} + \frac{1}{|\vec{r}|} \right) dt. \quad (4.6)$$

Bei der störungstheoretischen Rechnung, wie sie in [36] (supplemental) ausgeführt wird, ergibt sich für die Phase jeder einzelnen Trajektorie beim Auftreffen auf den virtuellen Detektor ( $t_1 = \infty$ )

$$\phi = \int_{t_0}^{\infty} \left( \frac{\vec{v}^2(t)}{2} + I_p - \frac{1}{|\vec{r}|} \right). \quad (4.7)$$

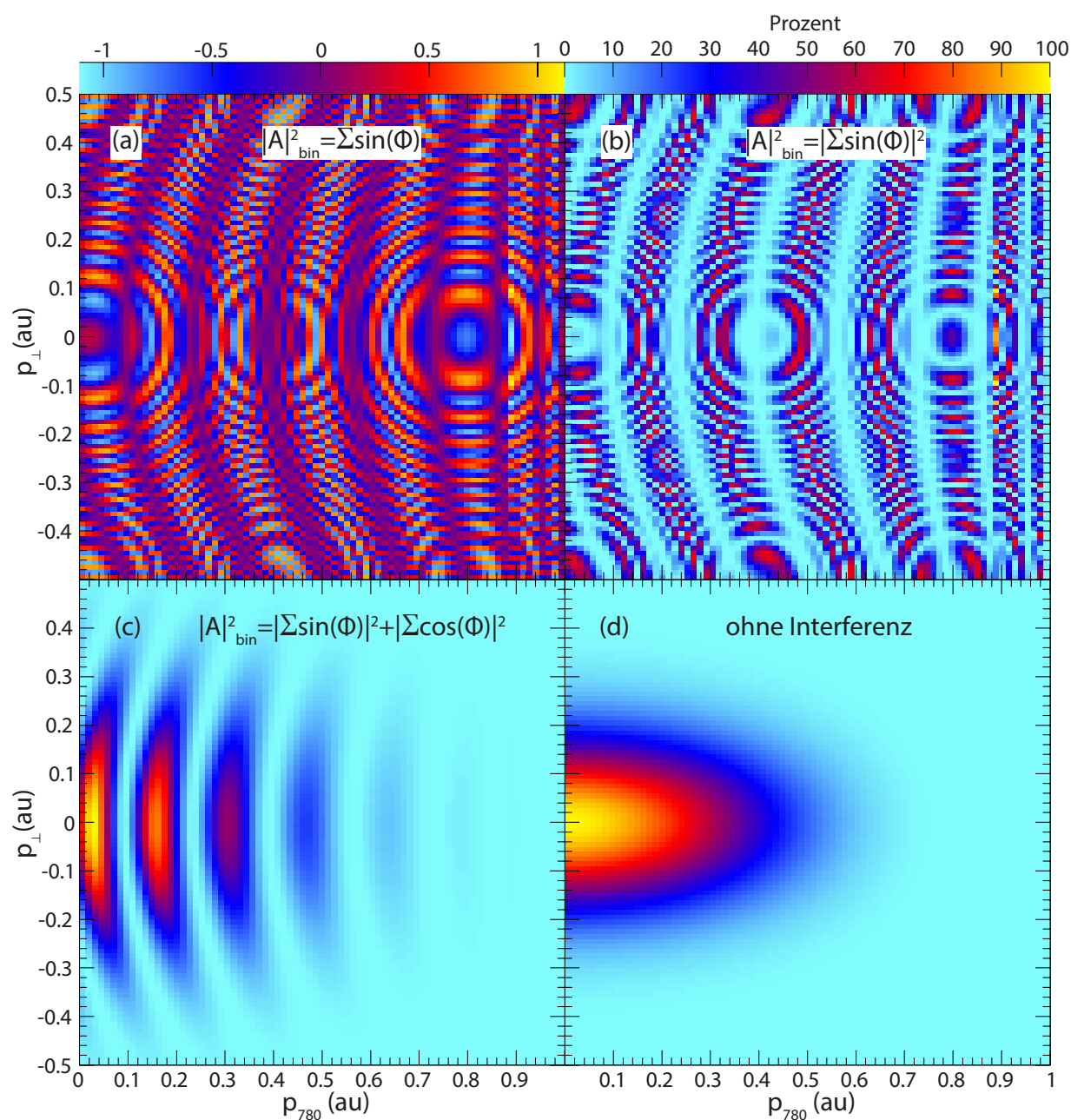
Die berechneten Impulse (CTMC) und Phasen werden in einer Tabelle gespeichert und in einem Histogramm eingetragen. Die Elektronen interferieren miteinander, sobald sie im selben Bin des Histogramms landen. Die Wahrscheinlichkeit eines jeden Bins ist bestimmt durch die kohärente Überlagerung der berechneten Elektronen darin

$$|A|_{bin}^2 = \left| \sum_j e^{-i\phi_j} \right|^2 \quad (4.8)$$

$$= \left| \sum_j \cos(\phi_j) \right|^2 + \left| \sum_j \sin(\phi_j) \right|^2, \quad (4.9)$$

wobei  $j$  das  $j$ -te Elektron in diesem Bin bezeichnet.

Am Beispiel der Intracycle-Interferenz ist die Bildung des Interferenzmusters im Impulsraum entsprechend Gleichung 4.8 in Abbildung 4.4 gezeigt. Die Simulation ist für linear polarisiertes Licht der Wellenlänge 780 nm gerechnet und es werden insgesamt nur Elektronen aus zwei aneinander grenzenden Viertelperioden gestartet. Zur Vereinfachung ist diese Rechnung ohne Berücksichtigung des Coulomb-Potentials ausgeführt. In Abb.4.4(a) wird jede Trajektorie mit dem Sinus der Phase gewichtet und anschließend in das dem Impulsfenster entsprechende Bin gefüllt. Wird das Histogramm aus Abb.4.4(a) quadriert, ergibt sich die Verteilung in Abb.4.4(b). In Abb.4.4(c) fließt schließlich die Gewichtung der gesamten Gleichung 4.8 ein und das typische Intracycle-Interferenzmuster ist deutlich erkennbar. Zum Vergleich ist in Abb.4.4(d) die Elektronenimpulsverteilung ohne Einfluss der Phase dargestellt.



**Abbildung 4.4:** Elektronenimpulsverteilungen mit verschiedenen Gewichtungen für eine Rechnung mit linear polarisiertem Licht der Wellenlänge 780 nm und mit einer Intensität von  $I_{780\text{ nm}} = 7,7 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . In dieser Rechnung wurde das Coulomb-Potential vernachlässigt. In (a) ist jede Trajektorie mit dem Sinus der Phase gewichtet, während in (b) das gesamte Histogramm (a) quadriert wurde. (c) das vollständige Interferenzmuster, welches sich aus der Summe des Histogramms (b) und einem quadrierten Histogramm, bei dem die Elektronen mit dem Kosinus der Phase gewichtet wurden (Gleichung 4.8), ergibt. (d) die Endimpulsverteilung ohne Berücksichtigung von Interferenzeffekten. (a) Farbkodierung entsprechend der Skala oben links. (b)-(c) Farbkodierung entsprechend der Skala oben rechts.

# Kapitel 5

## Doppelt angeregte Zustände in starken Laserfeldern

Durch das periodische elektrische Feld eines ultrakurzen Pulses kann ein getunneltes Elektron durch das Laserfeld zurück zum Kern getrieben werden. Unter dem Einfluss des Coulomb-Potentials wird es bei geeigneten Startbedingungen in einem hoch angeregten Zustand in großer Entfernung vom Kern, dem sog. Rydbergzustand, eingefangen. Dieser Prozess wird „Frustrated-Tunnel-Ionization“ (FTI) genannt und wurde zuerst 2008 in [38] experimentell an Atomen nachgewiesen. Kurz darauf wurde gezeigt, dass der FTI-Prozess auch nach der Coulomb-Explosion von Molekülen stattfinden kann [39], bei dem angeregte, neutrale Fragmente nach der Explosion übrig bleiben. Zudem können bei Mehrfachionisation eines Moleküls auch mehrere Elektronen durch FTI eingefangen werden [40]. Während des Tunnel- bzw. Einfangprozesses kann es zu einer zusätzlichen Anregung des elektronischen Kerns (Kern und inneres angeregtes Elektron) kommen: der Übergang vom ionischen Grundzustand  $^2P_{3/2}$  in den ersten angeregten Zustand  $^2P_{1/2}$ . Das Elektron im Rydbergzustand und der elektronische Kern im angeregten Zustand bilden zusammen einen doppelt angeregten Zustand.

Durch die im System gespeicherte Energie wird der Prozess der Autoionisation möglich. Ein Teil der Rydbergserie, welche gegen das  $^2P_{1/2}$  Kontinuumslimit konvergiert, liegt bei der Abregung des elektronischen Systems in den ionischen Grundzustand  $^2P_{3/2}$  im Kontinuum. Die so einzeln zurückbleibenden Elektronen und Ionen werden mit der COLTRIMS Messmethode detektiert.

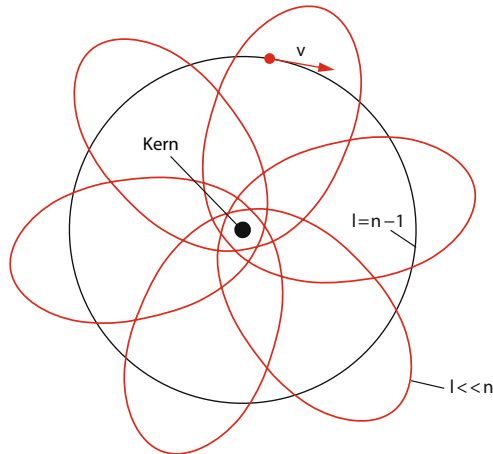
In den Arbeiten von Fechner et al. [41, 42] wurde erstmalig der Nachweis von Population doppelt angeregter Zustände durch FTI erbracht, weshalb das folgende Kapitel auch deren Erklärungen folgt. Durch die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen höher aufgelösten Impulsspektren der Autoionisation von Argon, können die Ergebnisse aus [41] untermauert werden. Zusätzlich zu Argon wurde bei ähnlichen experimentellen Parametern molekularer Stickstoff  $N_2$  auf die Signatur der Autoionisation untersucht. Dabei wurde festgestellt, dass das Modell nicht eins zu eins auf den Fall von Stickstoff übertragen werden kann.

## 5.1 Rydbergzustände

Bei Rydbergzuständen handelt es sich um elektronisch hoch angeregte Zustände mit Energien  $E_n$ , welche durch die Rydberg-Formel

$$E_n = -\frac{13,6 \text{ eV}}{n^2} \quad (5.1)$$

beschrieben werden, wobei  $n$  die Hauptquantenzahl darstellt. Obwohl dieser Zusammenhang nur für atomaren Wasserstoff gilt, ist er auch für Rydbergatome gültig, bei denen sich das Elektron im Vergleich zum Durchmesser der Elektronenhülle im Grundzustand in großem Abstand vom Kern befindet und seine komplexen Felder mit einem  $1/r$ -Potential genähert werden können. Obiger Zusammenhang ist vor allem für große Drehimpulsquantenzahlen  $l$  gültig, da das Elektron nur in diesem Fall in klassischer Betrachtung eine Kreisbahn in großem Kernabstand hat.

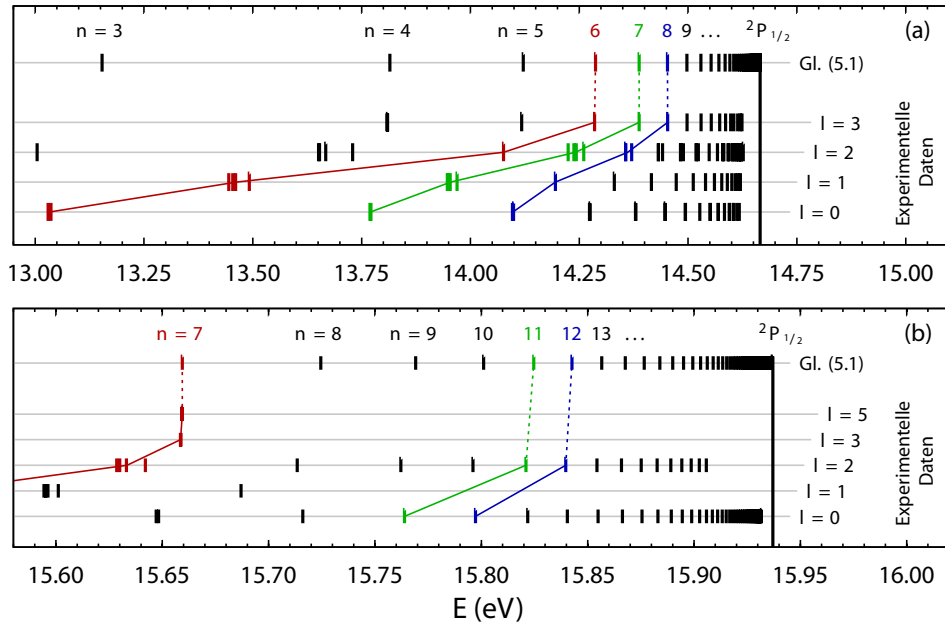


**Abbildung 5.1:** Klassische Bahnen von Rydbergelktronen mit  $l = n - 1$  (schwarz) und  $l \ll n$  (rot). Bild entnommen aus [43].

Für kleinere  $l$  werden aus den Bahnen Ellipsen (Abb. 5.1) und die verringerte Abschirmung des Kerns muss berücksichtigt werden. Die Rydbergelktronen erfahren so ein attraktiveres Potential, weshalb ihre Energiezustände verschoben werden. Diese Energieverschiebung wird durch den Quantendefekt  $\delta_{nl}$  berücksichtigt und die Rydbergformel verallgemeinert sich zu

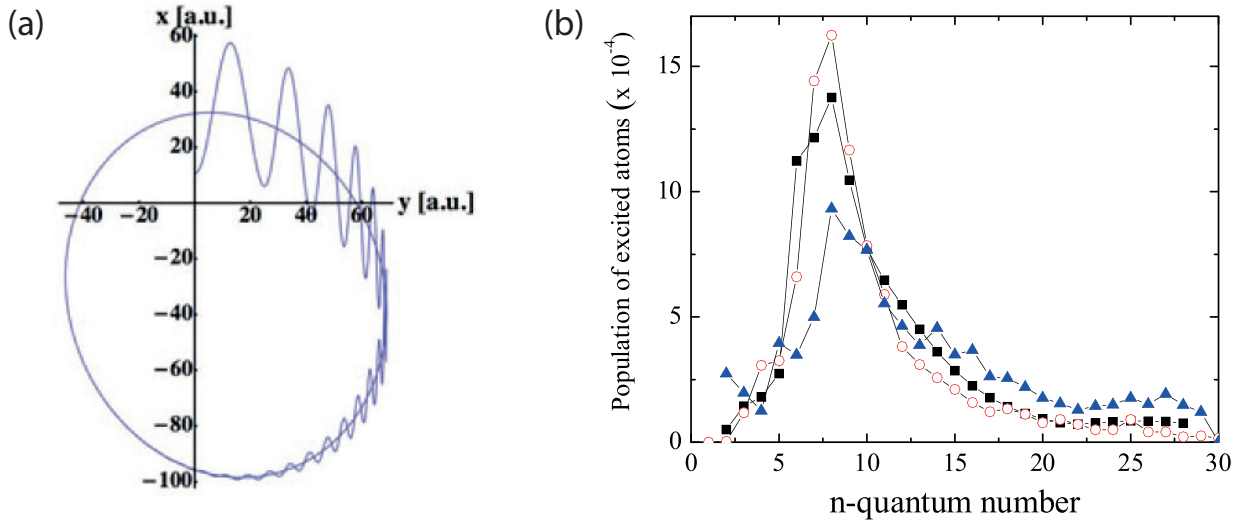
$$E_{n,l} = -\frac{13,6 \text{ eV}}{(n - \delta_{n,l})^2}. \quad (5.2)$$

Ein Vergleich spektroskopisch ermittelter Daten ( $^2P_{1/2}$ -Serie) [44] mit der einfachen Rydbergformel 5.1 zeigt, dass sich die Werte für steigende  $l$  annähern (Abb. 5.2). Bereits ab  $l \approx 3$  ist ihre Abweichung zueinander deutlich kleiner als der Abstand zum benachbarten Zustand.



**Abbildung 5.2:** Vergleich spektroskopischer Daten aus NIST [44] mit der Rydbergformel 5.1 für einen Teil der  $2P_{1/2}$ -Serie von Krypton (a) und Argon (b). Zur besseren Sichtbarkeit der Energieverschiebungen bei wachsendem  $l$  sind einige Zustände mit gleichem  $n$  farblich markiert. Für wachsende  $l$  nähern sich die beiden Werte an. Abbildung übernommen aus [41].

In starken Laserfeldern können solch hoch angeregte Zustände durch den Prozess der (FTI) [38] populiert werden. Im Tunnelmodell ist der Tunnelvorgang meistens gleichbedeutend mit der Tunnelionisation - also dem Übergang vom gebundenen in den freien Zustand eines Elektrons. Wird aber das Coulomb-Potential beim Tunneln mit berücksichtigt, kann FTI auftreten. Unter der Annahme eines instantanen Tunnelprozesses zu einer Zeit  $t_t$  befindet sich das Elektron am Tunnelausgang - nur wenige Bohr-Radien entfernt vom positiv geladenen Kern. Zu dieser Zeit hat das Elektron eine hohe negative potentielle Energie von ein paar eV. Dann oszilliert das Elektron unter dem Einfluss des Laserfeldes und des Coulomb-Feldes und wird nicht frei, also nicht ionisiert, wenn es nicht die attraktive Coulomb-Kraft überwinden kann (s. Abb. 5.3(a)). Man erwartet FTI hauptsächlich für Elektronen, die in der Nähe eines Maximums des Laserfeldes ( $\phi_t = 0$ ) geboren werden, da in diesem Fall die Driftenergie durch den Laserpuls  $E_{\text{Drift}} = 2U_p \sin^2 \phi_t$  nahe null ist und die Energie der ersten Rückstreuung noch niedriger als die potentielle Energie des Coulomb-Feldes ist. Eine detaillierte Analyse, welche Anfangsbedingungen zu FTI führen, findet sich in [45]. Klassische und quantenmechanische Berechnungen für Helium haben ergeben, dass bei einer Laserintensität von  $I=10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> die meisten Anregungen bei der Hauptquantenzahl  $n=8$  auftreten [38]. Abbildung 5.3(b) zeigt, dass die Verteilungen der angeregten Zustände einer MC-Simulation (rot) und zweier quantenmechanischer Rechnungen (schwarz, blau) übereinstimmen.



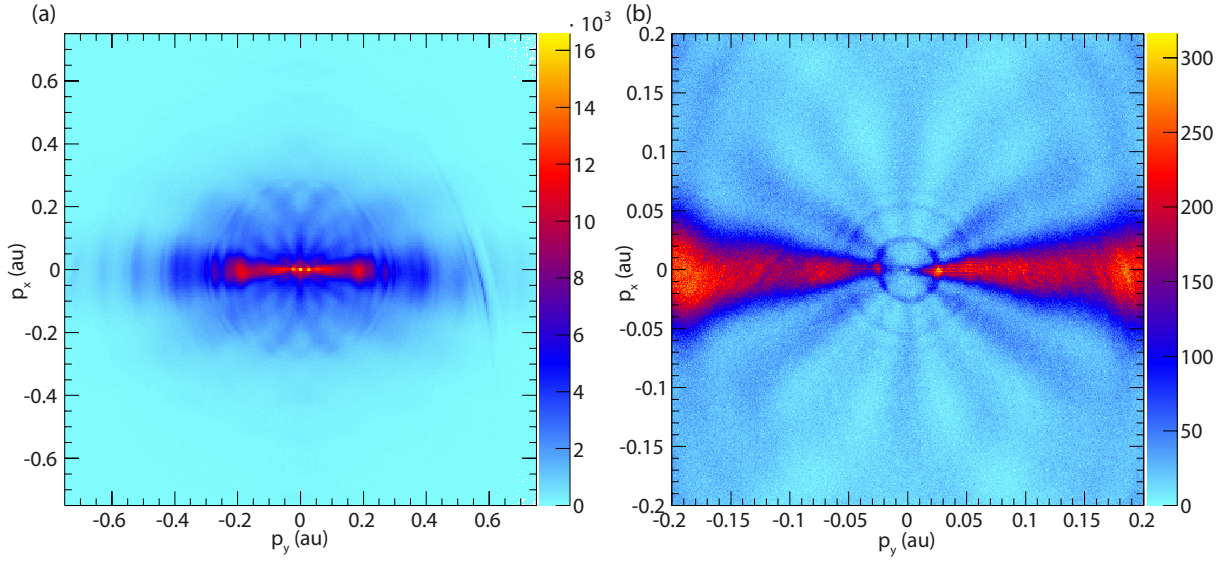
**Abbildung 5.3:** (a) Eine für FTI typische klassische Trajektorie im Ortsraum, welche zuerst durch den Laser zur Oszillation gebracht wird und am Ende des Laserpulses in einem gebundenen Rydbergorbit verbleibt. Diese Typen von Trajektorien haben im Gegensatz zu den ionisierten Trajektorien eine negative Gesamtenergie. In (b) sind eine klassische Rechnung (rot) und zwei quantenmechanische Rechnungen dargestellt. Die quantenmechanischen Rechnungen beinhalten eine nicht-störungstheoretische Behandlung von He, welche durch das Lösen der Schrödingergleichung in der nicht-relativistischen Dipolnäherung erreicht wurde. Eine der Simulationen ist in der SAE-Näherung durchgeführt (schwarz) und die andere behandelt beide Elektronen (blau). Bild (a) ist entnommen aus [45] und (b) aus [38].

## 5.2 Doppelanregung und Autoionisation

Die elektronische Struktur von Rydbergatomen von Edelgasen beinhaltet den ionischen Grundzustand  $^2P_{3/2}$  und den ersten angeregten Zustand  $^2P_{1/2}$ . Wegen der Spin-Bahn-Kopplung unterscheiden sich die Ionisationspotentiale der beiden Zustände um eine Energie  $\Delta E$  und es gibt zwei gegen diese Potentiale konvergierende Rydbergserien. Die Zustände, die zum  $^2P_{1/2}$ -Kontinuum konvergieren, werden als doppelt angeregte Zustände bezeichnet.

Einige der Zustände, die zum  $^2P_{1/2}$ -Limit konvergieren, liegen über der  $^2P_{3/2}$ -Grenze (s. Abb. 5.5(b)). Diesen Zuständen ist es möglich, ohne eine weitere Energiequelle zu ionisieren, indem die im elektronischen Kern gespeicherte Anregungsenergie an das Rydbergelctron abgegeben wird. Die Endprodukte sind ein Atom im ionischen Grundzustand  $^2P_{3/2}$  und ein freies Elektron. Diese beiden Fragmente werden im COLTRIMS Experiment detektiert und im Folgenden diskutiert.

Die Messung wurde mit linear polarisiertem Licht bei einer Intensität von  $1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  durchgeführt. Die beiden Targets Argon und molekularer Stickstoff  $N_2$  führten zu den in Abb. 5.4 und in Abb. 5.7 gezeigten Elektronenimpulsverteilungen. In der Auswertung wurde eine Bedingung auf die Flugzeit der Ionen gesetzt, wodurch jeweils nur die einfach ionisierten Atome ( $Ar^+$ ,  $N_2^+$ ) und deren Elektronen selektiert werden.



**Abbildung 5.4:** Elektronenimpulsverteilung der Messung der Einfachionisation von Argon mit linear polarisiertem Licht bei einer Wellenlänge von 780 nm und einer Intensität von  $1,4 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$ . Die Stärke des Extraktionsfeldes wurde bei der Messung auf 2,6 V/cm gestellt, sodass zwar nur Elektronenimpulse bis 0,75 au zuverlässig detektiert werden können, diese jedoch besser als bei höheren Spannungen aufgelöst sind. In (a) ist das gesamte gemessene Impulsspektrum in der Detektorebene dargestellt. (b) die gleichen Daten vergrößert und mit einer Beschränkung des Winkels  $|\theta| \leq 15^\circ$  zur besseren Sichtbarkeit der Ringe.

In Abb. 5.4(a) sind bekannte Merkmale des Elektronenimpulsspektrums vorhanden: die schmale Impulsverteilung entlang  $p_x = 0$  au gebildet durch Coulomb-Fokussierung, ATI-Interferenzen ab einem Impulsbetrag von etwa 0,25 au und ventilatorartige Strukturen [46], welche auf den Nullpunkt  $\{p_x, p_y\} = \{0, 0\}$  zeigen.

Neben diesen bekannten Strukturen sind im Bereich  $|p| < 0.1$  au deutlich Ringe zu erkennen (Abb. 5.4(b)), welche auf die Autoionisation von doppelt angeregten Rydbergzuständen zurückzuführen sind [41]. Die Energiedifferenz  $\Delta E$  der Zustände  $^2P_{3/2}$  und  $^2P_{1/2}$  beträgt bei Argon  $\Delta E = 177$  meV [47, 44]. Die Energie  $E_{\text{Auto}}$ , welche die Rydbergelktronen durch den Autoionisationsprozess bekommen können, ist gegeben durch

$$E_{\text{Auto}} = -\frac{13,6eV}{n^2} + 0.177eV. \quad (5.3)$$

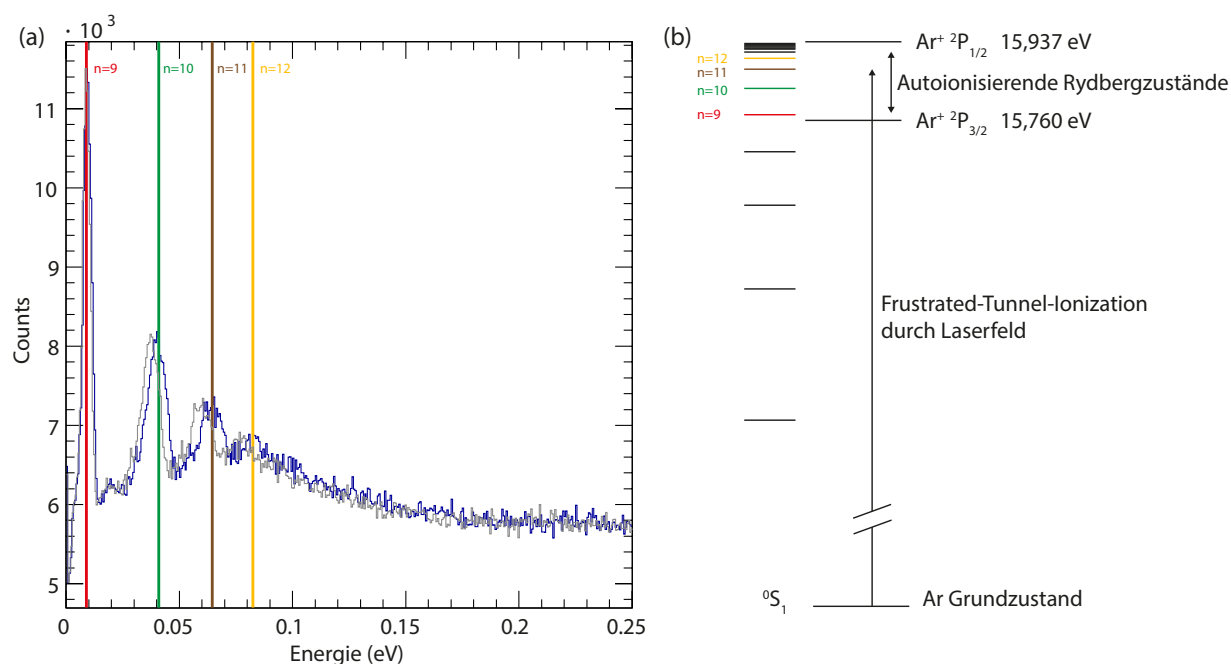
Aus Tabelle 5.1 wird ersichtlich, dass mit der Energiedifferenz  $\Delta E$  der beiden Zustände bei Argon Elektronen ab dem Energieniveau  $n=9$  ionisiert werden können. Energieniveaus kleinerer Quantenzahlen  $n < 9$  sind zu stark gebunden und können nicht entkommen.

n	$-13.6\text{eV}/n^2$ (eV)	$E_{\text{Auto Ar}}$ (eV)
8	-0.213	-0.036
9	-0.168	0.009
10	-0.136	0.041
11	-0.112	0.065
12	-0.094	0.083

**Tabelle 5.1:** Die Abhängigkeit der Energien  $E_{\text{Auto}}$  von der Hauptquantenzahl  $n$ , welche die Elektronen nach dem Autoionisationsprozess haben. Bei Argon können erst Zustände ab  $n \geq 9$  autoionisiert werden.

Die graue Kurve in Abb. 5.5(a) zeigt die Energieverteilung der gemessenen Elektronen für Argon im Bereich der Autoionisationsringe mit der Kalibrierungsmethode, wie sie in Abschnitt 3.3.3 beschrieben ist. Die Peaks haben zwar die zur Rydbergserie passenden Abstände relativ zueinander, jedoch noch einen Offset von den absoluten Werten. Da außerdem durch die Arbeit von Fechner et al [41] gesichert ist, dass es sich tatsächlich um Strukturen durch Autoionisation handelt, können sie zur Kalibrierung des Experiments verwendet werden. Die blaue Kurve in Abb. 5.5(a) zeigt die Energieverteilung der gemessenen Elektronen nach der Kalibrierung mithilfe der Autoionisationspeaks.





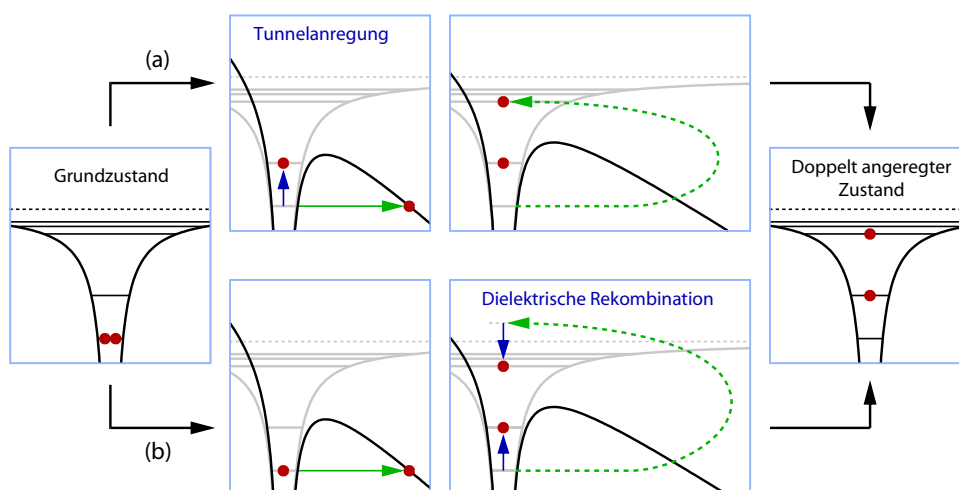
**Abbildung 5.5:** (a) Die blaue Kurve entspricht der Energieverteilung der Elektronen mit der Winkelbedingung, wie sie auch in 5.4 angewandt ist. Die graue Kurve stellt die Energieverteilung vor der Kalibrierung mittels der Autoionisationspeaks dar. Die vertikalen Linien entsprechen den mit der einfachen Rydbergformel 5.3 berechneten Energieniveaus  $n = \{9, 10, 11, 12\}$  für Argon. (b) Schematisches Bild der Energielevel in Argon und der an den angeregten ionischen Zustand  $^2P_{1/2}$  konvergierende Rydbergserie. Sobald das System in den ionischen Grundzustand  $^2P_{3/2}$  übergeht, sind alle Level der Rydbergserie ab  $n = 9$  ungebunden und tauchen als Peaks im Energiespektrum (a) auf.

Ab  $n=12$  sind keine Peaks im Energiespektrum für Argon mehr zu erkennen. Dies stimmt mit den theoretischen Vorhersagen für die Besetzungswahrscheinlichkeit der Zustände durch FTI überein, wie sie im vorigen Abschnitt beschrieben sind. Obwohl in diesem Experiment eine andere Intensität und ein anderes Target als in den Berechnungen verwendet wird, scheint sich die Kurve aus [38] (Abb. 5.3), welche bei  $n=8$  ihr Maximum hat, nicht signifikant zu verschieben. Die sehr gute Übereinstimmung der gemessenen Energien mit der einfachen Rydbergformel 5.1 zeigt, dass hauptsächlich Rydbergzustände mit hohem  $l$  durch FTI angeregt wurden, da sich die Rydbergserie für den  $^2P_{1/2}$  Zustand von Argon ab  $l \approx 3$  stark den Werten der einfachen Serie nähert (Abb. 5.2).

Zwei mögliche Wege führen zu doppelt angeregten Zuständen (Abb. 5.6). In einem Fall ist es möglich, dass das Atom während des Tunnelns ganz am Anfang des FTI-Prozesses in den  $^2P_{1/2}$ -Zustand angeregt wird. Nach der Rückkehr des getunnelten Elektrons mit sehr geringer kinetischer Energie wird es eingefangen und ein doppelt angeregter Zustand bleibt zurück.

Bei der zweiten Möglichkeit der Doppelanregung wird das Atom nicht beim Tunneln angeregt und verbleibt im  $^2P_{3/2}$ -Zustand. Hat das rückkehrende Elektron die passende

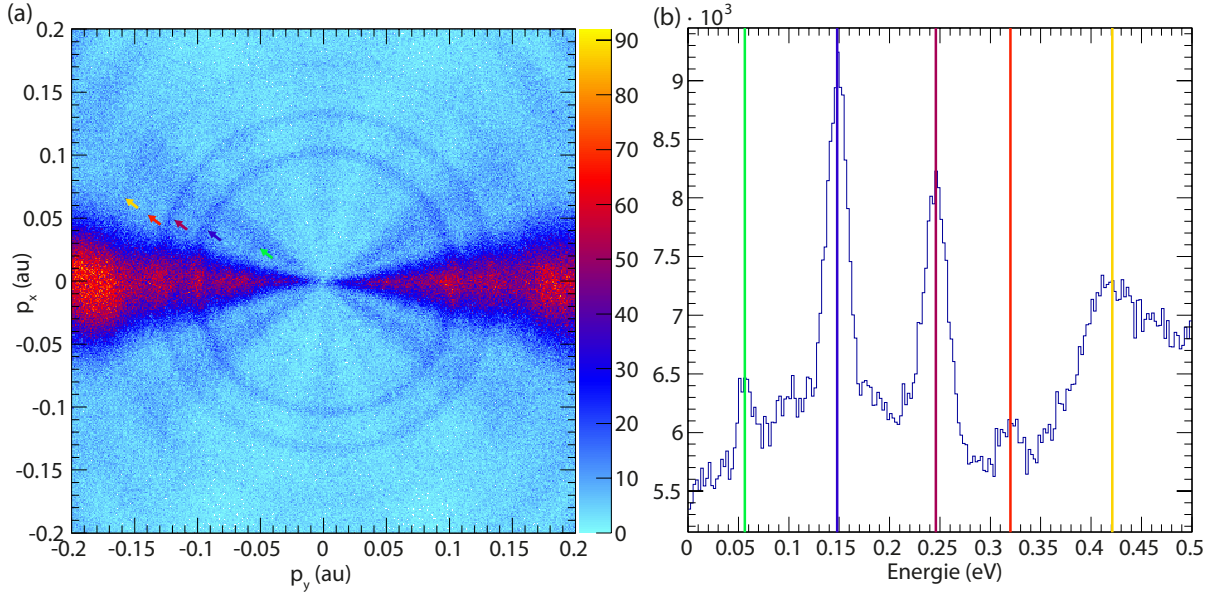
kinetische Energie, kann es in einen Rydbergzustand eingefangen werden und im gleichen Zuge die übrig bleibende Energie dem Ion zur Anregung in den  $^2P_{1/2}$  Zustand abgeben. Dieser resonante Einfang wird dielektrische Rekombination genannt und wurde bereits in verschiedenen Experimenten [48, 49, 50] diskutiert.



**Abbildung 5.6:** Zwei Wege, um während der FTI vom Grundzustand in den doppelt angeregten Zustand zu gelangen. Eine Möglichkeit ist, dass das zweite Elektron direkt beim Tunneln des ersten Elektrons in den angeregten Zustand versetzt wird. Bei der anderen Möglichkeit verbleibt während des Tunnelns ein Elektron im Grundzustand. Beim Zurückkommen des getunnelten Elektrons kann es einen Teil seiner Energie abgeben und das Elektron im Grundzustand anregen (dielektrische Rekombination). Abbildung entnommen aus [41].

Bisher gibt es nur in der Arbeit von Fechner et al. [41] und in dieser Arbeit Nachweise für die Population doppelt angeregter Zustände durch FTI.

Nach der Kalibrierung der Messapparatur mittels der autoionisierenden Rydbergzustände von Argon, wird im Folgenden die Impuls- und Energieverteilung von molekularem Stickstoff als Target untersucht. In Abb. 5.7(a) sind das Elektronenimpulsspektrum von  $N_2$  mit einer Einschränkung im Winkel  $|\theta| \leq 15^\circ$  und das entsprechende Energiespektrum (b) dargestellt.



**Abbildung 5.7:** Photoelektronenspektrum der Einfachionisation von  $N_2$  Molekülen. Die experimentellen Parameter sowie die Detektoreinstellungen sind die gleichen, wie in der Messung mit Argon. Zur besseren Sichtbarkeit der Ringe ist der Winkel auf  $|\theta| \leq 15^\circ$  beschränkt. Die farbigen Pfeile im Impulsspektrum (a) zeigen auf die Ringe, die im Energiespektrum (b) als Peaks erscheinen und durch vertikale Linien der jeweils passenden Farbe markiert sind.

Die Peaks im Energiespektrum, welche mit einer Gauß-Funktion gefittet wurden, sind nahezu äquidistant (Tabelle 5.2) und folgen so nicht der quadratisch abnehmenden Abstandsverteilung der einfachen Rydbergformel 5.1.

$E_{\text{Auto } N_2}$ (eV)	Fehler (eV)	$E_{\text{Dist}}$ (eV)
0,056	$4,47 \cdot 10^{-4}$	-
0,148	$1,89 \cdot 10^{-4}$	0,092
0,246	$2,49 \cdot 10^{-4}$	0,097
0,320	$8,31 \cdot 10^{-4}$	0,075
0,421	$1,15 \cdot 10^{-3}$	0,100

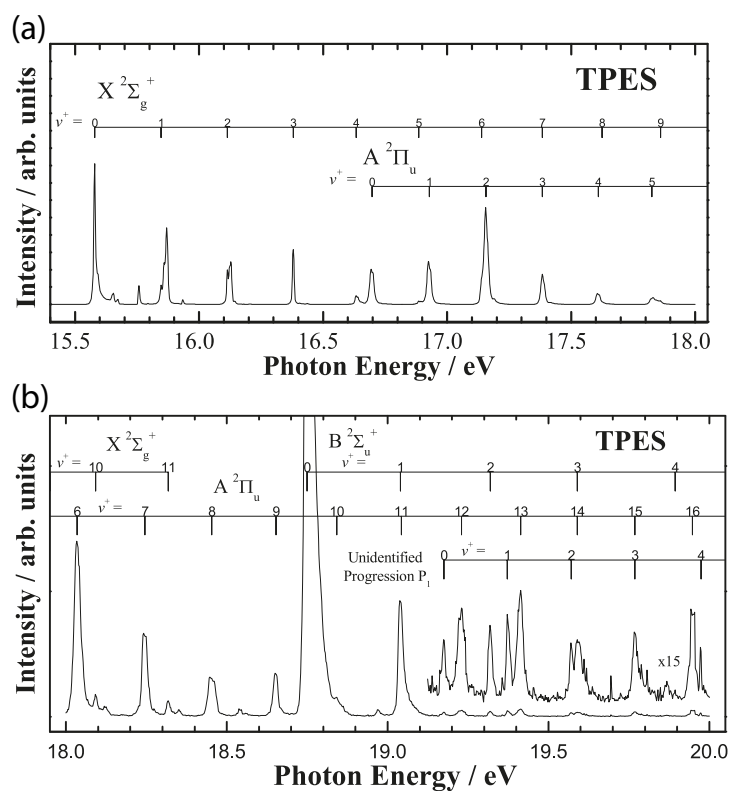
**Tabelle 5.2:** Die Werte der aus Abb. 5.7(b) bestimmten Autoionisationsenergien für  $N_2$  mit einem durch einen Gaußfit der Peaks entstandenen Fehler. In der letzten Spalte sind die Abstände der Peaks zueinander  $E_{\text{Dist}}$  dargestellt. Im Gegensatz zu den Energien der Messung mit Argon, sind diese Peaks nahezu äquidistant.

Eine Möglichkeit zur Erklärung der Peakabstände ist, dass sich die gefundenen Peaks aus zwei verschiedenen Übergängen im doppelt angeregten Stickstoffmolekül mit den Übergangsenergien  $\Delta E_1 = 0,6$  eV und  $\Delta E_2 = 1,0$  eV zusammensetzen. Die sich daraus ergebenden Energien für die Autoionisation sind in Tabelle 5.3 gezeigt.

$E_{\text{Auto}} N_2 (\Delta E_1)$ (eV)	$E_{\text{Auto}} N_2 (\Delta E_2)$ (eV)
4: 0,056	4: 0,150
5: 0,222	5: 0,456
6: 0,322	

**Tabelle 5.3:** Die ersten drei frei werdenden Rydbergzustände für  $\Delta E_1 = 0,6$  eV (links) und die ersten zwei für  $\Delta E_2 = 1,0$  eV (rechts).

In den aus ZEKE-Spektroskopie („Zero-Electron-Kinetic-Energy“) Experimenten gewonnenen Informationen über die Abstände der Vibrationslevel im Stickstoffmolekül [51] können Übergänge gefunden werden, welche in etwa  $\Delta E_1$  und  $\Delta E_2$  entsprechen (Abb. 5.8). Wegen der großen Anzahl an Möglichkeiten ist dabei eine eindeutige Zuordnung der Übergänge zwischen den Vibrationsleveln zu den gemessenen Rydbergzuständen nicht gelungen.



**Abbildung 5.8:** ZEKE-Spektrum im Photonenenergiebereich 15,4-18,0 eV (a) und 18,0-20,0 eV (b). Abbildung entnommen aus [51].

# Kapitel 6

## Zero Kinetic Energy Structure

Eine etablierte Methode, um hoch angeregte Elektronen (Rydbergzustände) von einem Atom oder Molekül zu extrahieren, ist die Verwendung eines konstanten elektrischen Feldes [52]. So können die Rydberganregungen durch Messung der ionisierten Elektronen als Funktion der angelegten Feldstärke untersucht werden. Die Ergebnisse des folgenden Kapitels haben ihren Ursprung in der Zusammenarbeit mit der Gruppe von Jan-Michael Rost, welche die theoretische Interpretation der im folgenden Kapitel vorgestellten Messdaten entwickelt hat. Die Ergebnisse dieses Kapitels wurden in [53] veröffentlicht.

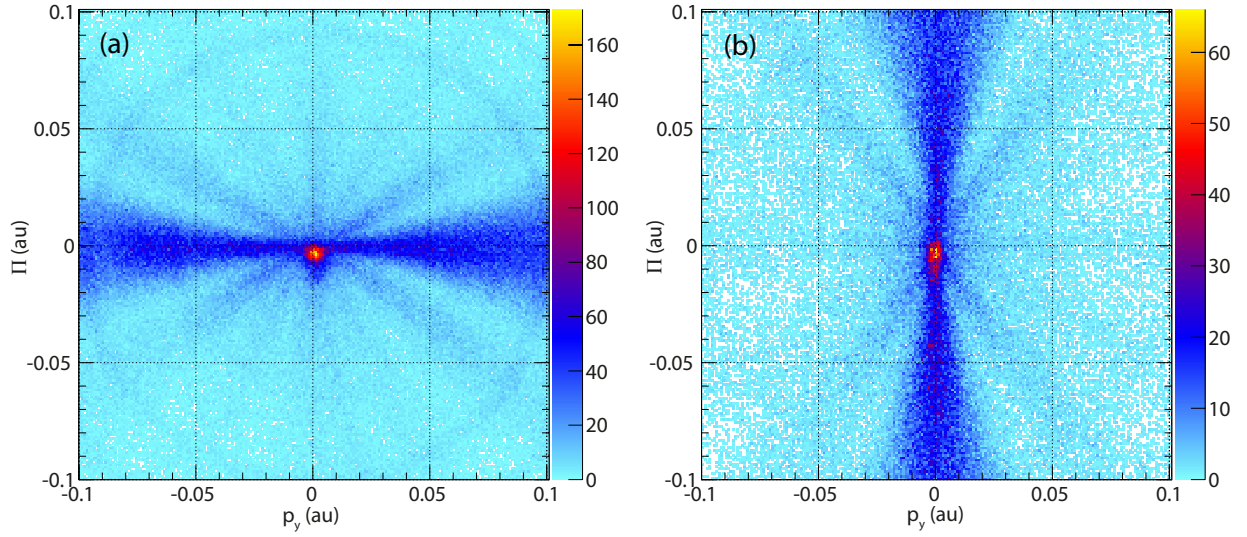
Im Gegensatz zu den zahlreichen spektroskopischen Experimenten zu diesem Thema mit dem Fokus auf spezifische Eigenschaften einzelner Rydbergzustände (ZEKE-Spektroskopie) [54, 55], geht es in diesem Kapitel um eine differenzierte Analyse der 3D-Impulsverteilung aller ionisierten Elektronen. Nach der Anregung der Elektronen durch ein gepulstes Laserfeld [38], führt die Kombination aus einem konstanten elektrischen Feld (2-10 V/cm) und dem Potential des verbleibenden Ions zu komplizierter Elektronendynamik, deren Signatur im Photoelektronenimpulsspektrum ein Peak (Zero-Energy-Peak, ZEP) bei Impuls von null ist [56, 57]. Eine für dieses Problem von Ulf Saalmann et al [53] entwickelte klassische Beschreibung dieser Dynamik reproduziert die experimentellen Ergebnisse sehr genau. Für diese Beschreibung wird der Hamiltonoperator

$$\mathcal{H} = H + \mathbf{r} \cdot \mathbf{f}(t) \cos \omega t \quad (6.1)$$

mit dem Stark-Hamiltonoperator

$$H = \frac{\mathbf{p}^2}{2} - \frac{1}{r} - Fz, \quad r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2} \quad (6.2)$$

verwendet, wobei  $F$  ein konstantes elektrisches Feld in negative  $z$ -Richtung zeigend ist. Der zweite Term in 6.1 stellt die Wechselwirkung mit dem Laserpuls dar, dessen Einhüllende durch  $\mathbf{f}(t)$  gegeben ist. Das Licht ist linear polarisiert und zeigt entweder parallel oder senkrecht zur Richtung des Extraktionsfeldes. Für die Simulation werden die üblichen Tunnelwahrscheinlichkeiten (s. Abschnitt 2.3) verwendet und etwa  $10^7$  Trajektorien bewegen sich entsprechend des Hamiltonoperators  $\mathcal{H}$ . Dadurch wird die Erzeugung der Rydbergzustände und die anschließende Starkdynamik beschrieben.



**Abbildung 6.1:** Gemessene Impulsspektren der Einfachionisation von  $N_2$  mit Laserpulsen linearer Polarisation (780 nm). Sowohl die Flugzeitrichtung als auch die Spektrometerfeldrichtung sind entlang  $z$ . In (a) ist das elektrische Feld des Lasers senkrecht und in (b) parallel zur Spektrometerfeldrichtung polarisiert. In beiden Spektren ist ein zentraler Peak vorhanden, der leicht in  $z$ -Richtung verschoben ist. Beide Spektren haben eine Bedingung in der Impulsrichtung senkrecht zu der dargestellten Ebene  $|p_x| < 0.01$  au.

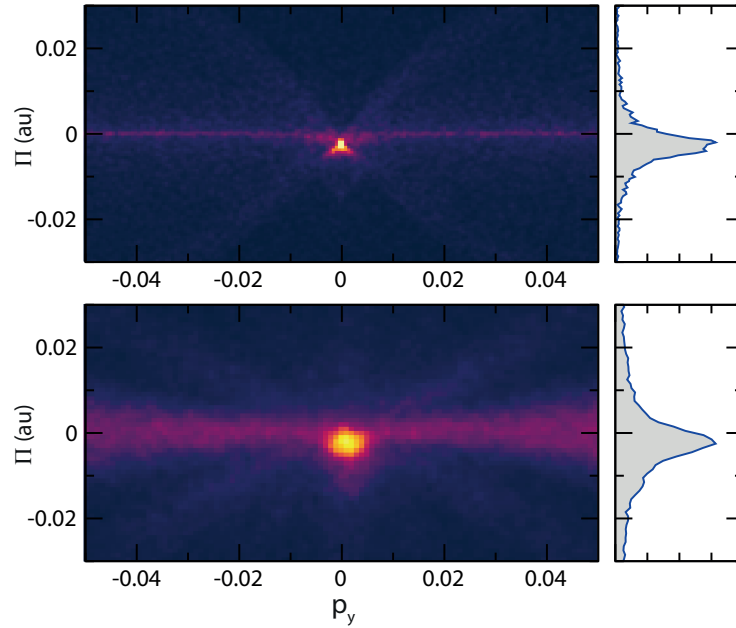
In COLTRIMS-Experimenten wird das Elektron auf dem Weg zum Detektor durch das konstante elektrische Feld immer mehr beschleunigt, wodurch sein Endimpuls vom Ort der Detektion abhängt. Zur Vermeidung dieser Abhängigkeit wird ein effektiver Impuls  $\Pi$  mithilfe der Flugzeit  $t_{\text{tof}}$  eingeführt

$$\Pi = p_z t_{\text{tof}} - F t_{\text{tof}}, \quad (6.3)$$

der den Effekt des konstanten elektrischen Feldes asymptotisch eliminiert. Mit der Flugzeit  $t_{\text{tof}}$  und dem Abstand zum Detektor  $z_d$  ergibt sich  $\Pi = z_d/t_{\text{tof}} - F t_{\text{tof}}$ , was äquivalent ist zu Gleichung 3.23 aus der Beschreibung des experimentellen Teils. In einer üblichen Auswertung eines COLTRIMS-Experimentes ist mit  $p_z$  bereits der effektive Impuls  $\Pi$  gemeint. Die darin enthaltene Annahme ist, dass die Elektronenbewegung in zwei Bereiche getrennt werden kann. Der erste Bereich stellt die Interaktionszone dar, in der die Elektronen vom Atom getrennt werden und in welcher das konstante elektrische Feld vernachlässigt wird. Der zweite Bereich ist der, in den das Elektron mit einem Anfangsimpuls  $p_z$  startet und in welchem es durch das konstante elektrische Feld auf den Detektor gelenkt wird. Diese Annahme ist nicht mehr gültig für die hier betrachtete Situation, da nun das konstante elektrische Feld in der Interaktionszone nicht mehr vernachlässigt werden darf.

In Abb. 6.1 ist die Elektronenimpulsverteilung der Einfachionisation mit linear polarisiertem Licht von  $N_2$  dargestellt. In Abb. 6.1(a) ist das elektrische Feld senkrecht und in Abb. 6.1(b) parallel zum Spektrometerfeld polarisiert. Bei genauerer Betrachtung der Abbildung wird deutlich, dass der zentrale Peak in  $z$ -Richtung (Feldrichtung, Flugzeitrichtung) verschoben ist. Dies spiegelt sich auch in der Simulation wider, in der die Position des

Peaks  $\Pi^*$  zu negativen Impulsen entgegengesetzt zum Extraktionsfeld verschoben ist. Der ZEP ist unabhängig von der Polarisationsrichtung des Lasers verschoben, was bestätigt, dass seine Verschiebung nur durch das Extraktionsfeld zustande kommt. Die qualitative Übereinstimmung von Theorie (Argon) und Experiment ( $\text{N}_2$ ) (Abb. 6.2) spricht dafür, dass der Laserpuls nur für die Population der Rydbergzustände verantwortlich ist und keinen Einfluss auf den Endimpuls der Ereignisse im zentralen Peak hat. Es spielt also für die Betrachtung des ZEPs keine Rolle, auf welche Weise die Rydbergzustände populiert wurden.

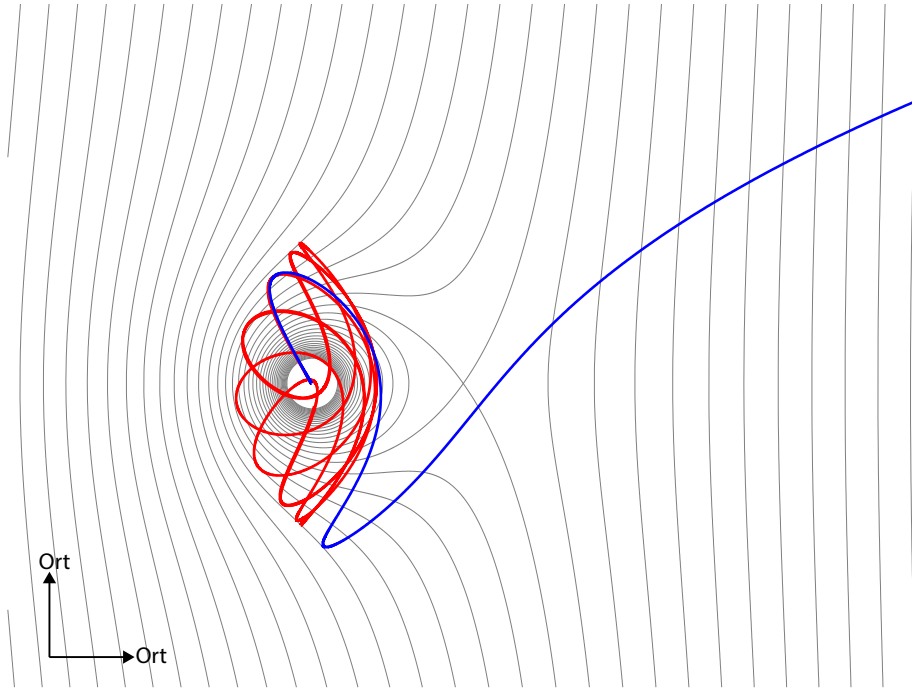


**Abbildung 6.2:** Elektronenimpulsspektren mit einer Bedingung in vertikaler Impulsrichtung  $|p_x| < 0.01$  au. Das Extraktionsfeld beträgt  $2,6$  V/cm und steht senkrecht zur Polarisation des Laserpulses ( $780$  nm,  $45$  fs). Die obere Impulsverteilung ist eine Rechnung für Argon und die untere eine Messung mit Stickstoff ( $\text{N}_2$ ). Jeweils rechts daneben sind die Projektionen des Peaks, integriert über  $|p_y| < 0.005$  au, dargestellt. Abbildung entnommen aus [53].

## 6.1 Entstehung des ZEP

Die nahezu homogene Verteilung der Rydbergelektronen wurde von einem konstanten elektrischen Feld mit der Barriere bei einer Höhe von etwa  $1,2$  meV ( $F = 2,6$  V/cm) freigesetzt. Obwohl eine nicht verschwindende Impulsverteilung nahe null zu erwarten ist, ist die Bildung eines Peaks überraschend. Um dieses zu verstehen, wird die Dynamik der Simulation genauer untersucht, indem Trajektorien am Ursprung mit  $z = \rho = 0$  gestartet werden. Detaillierte formelle Zusammenhänge können in [53] (Supplemental) nachvollzogen werden.  $\rho$  ist der Abstand von der  $z$ -Achse und ergibt sich aus  $\rho = \pm\sqrt{x^2 + y^2}$ . Die Barriere liegt bei  $E_b = -2$  und die Rechnung ergibt, dass für Trajektorien mit Energien  $E$  zwischen  $-2$  und  $0$  etwa ein Drittel der Elektronen gebunden bleiben und zwei Drittel das Atom

verlassen ( $E = 0$  ist die Ionisationsschwelle). Zur besseren Veranschaulichung ist in Abb. 6.3 das Coulomb-Potential des Atoms unter dem Einfluss des Extraktionsfeldes dargestellt. Obwohl sich beide Elektronen über der Ionisationsschwelle befinden, verlässt nur eines das Atom (blaue Trajektorie). Das Elektron, welches der roten Trajektorie folgt, erfährt in einer Dimension ein bindendes Potential und nimmt einen quasistationären Orbit ein.

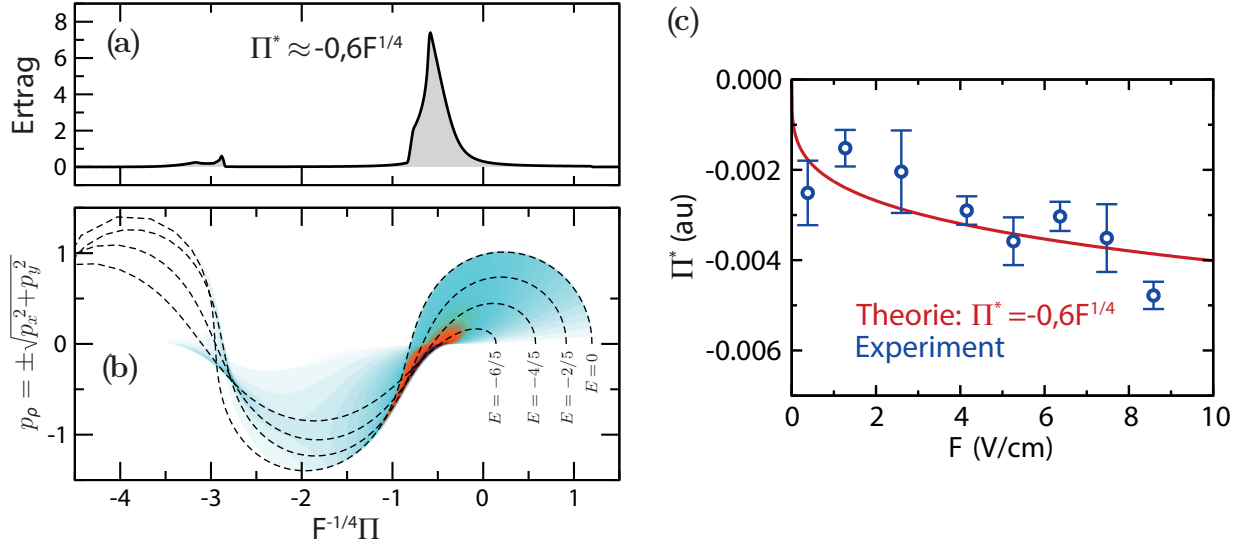


**Abbildung 6.3:** Das durch Äquipotentiallinien markierte Coulomb-Potential mit einer ungebundenen (blau) und gebundenen (rot) Elektronentrajektorie. Abbildung entnommen aus [58].

Die Verteilung der Endimpulse  $\Pi$  und  $p_\rho$  ist in Abbildung 6.4(b) dargestellt. Die gestrichelten Linien entsprechen Trajektorien mit konstanter Energie  $E$ . Sie unterscheiden sich durch den Winkel bezüglich des Feldes, mit dem sie von der Coulomb-Singularität aus starten. In Abhängigkeit dieses Winkels haben sie verschiedene  $p_\rho$  und  $\Pi$ . Für bestimmte Winkel sind sie sehr lange über der Barriere ( $t_{tof}$  sehr groß) und können deshalb sehr große negative  $\Pi$  bekommen (Gl. 6.3).

Für konstante Energien  $E$  oszilliert der Endimpuls  $p_\rho = \pm\sqrt{p_x^2 + p_y^2}$  als Funktion von  $\Pi$  mit kleiner werdender Amplitude und Periode (gestrichelte Linien). Auch bei festgehaltenem Impuls  $p_\rho$  verringern sich die Amplituden bei kleiner werdender Energie  $E$ . Dies führt zu einem Peak bei dem Endimpuls  $\{\Pi^*; p_\rho^*\} = \{-0, 6F^{1/4}, 0\}$ .





**Abbildung 6.4:** (a) Impulsverteilung für die Endimpulse  $p_\rho$  und  $\Pi$ . Die gestrichelten Linien zeigen die Endimpulse für Trajektorien vier verschiedener Energien  $E$ . (b) Impulsspektrum als Funktion von  $\Pi$ , integriert über  $|p_\rho| \leq 0,1$  au. (c) Die Abhängigkeit der ZEP-Position  $\Pi^*$  von der Extraktionsfeldstärke für Experiment (blaue Punkte) und Theorie (rote Linie). Die Polarisationsrichtung war für diese Messung senkrecht zur Extraktionsfeldrichtung und die  $N_2$ -Moleküle wurden mit einem 780 nm, 45 fs Laserpuls ionisiert. Abbildung entnommen aus [53].

Die Rechnungen sagen eine Abhängigkeit der Position des ZEP von  $F$  zu negativen Impulsen entlang der Extraktionsfeldrichtung voraus:  $\Pi^* = -0,6F^{1/4}$ . Diese Vorhersage stimmt sehr gut mit den Messungen für verschiedene Extraktionsfelder überein (Abb. 6.4(c)). Dabei ist besonders hervorzuheben, dass der Vorfaktor -0.6 und die Potenz 1/4 in der Gleichung für  $\Pi^*$  keine Fitfaktoren sind, sondern direkt aus den theoretischen Überlegungen stammen.

## 6.2 Genauigkeit

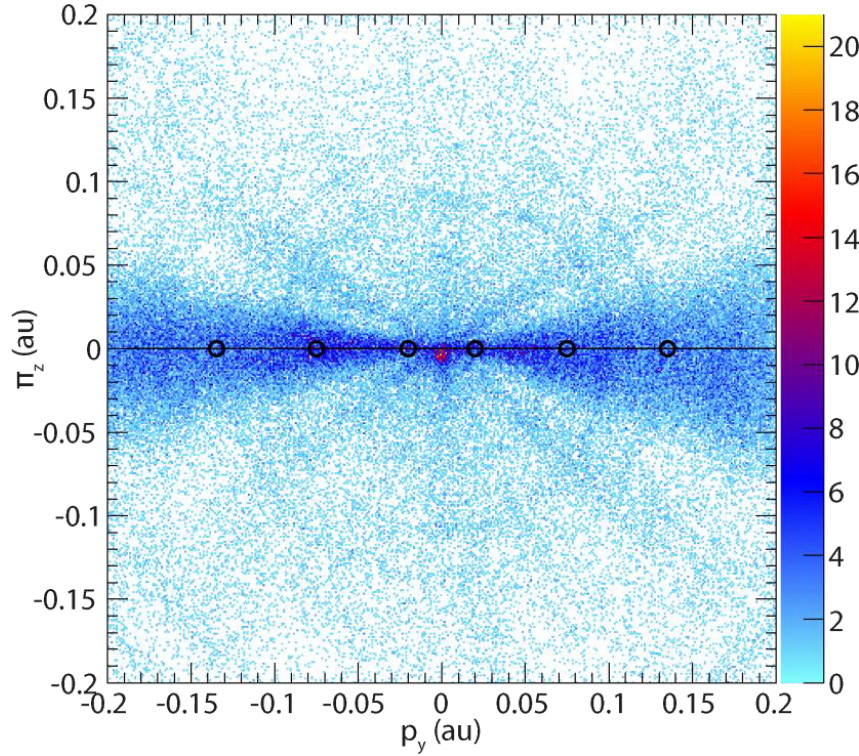
Da der ZEP um sehr kleine Impulse in Flugzeitrichtung verschoben ist, mussten bei dieser Messung die Genauigkeit bzw. der Fehler in der Impulsbestimmung berücksichtigt werden. Es sind drei Aspekte, welche die Genauigkeit der gemessenen Peakposition bestimmen:

- Kalibrierung des Detektors,
- Bestimmung der Null  $\pi_z$  des Impulsspektrums,
- Statistische Fehler durch Ungenauigkeiten experimenteller Parameter, wie die Flugzeit, der Abstand von der Reaktionszone zum Detektor und das elektrische Feld.

Die Kalibrierung des Detektors wird bei dem verwendeten Laserintensitätsbereich üblicherweise durch Anpassen des Spektrums an den Energieabstand der ATI-Ringe, welche bei

780 nm-Pulsen einen konstanten Abstand von 1,59 eV haben, durchgeführt. Die Kalibrierung beeinflusst die vertikale Achse von Abb. 6.4(b) und kann mit einer Genauigkeit von etwa 5 % realisiert werden.

Da der ZEP  $II^*$  nicht bei Impuls  $\pi_z = 0$  liegt, muss eine andere Signatur des Elektronenimpulsspektrums für die Bestimmung von  $\pi_z = 0$  gefunden werden. In diesem Fall wurden sechs Punkte an die Impulskeule mit einer Gaußverteilung gefittet (Abb. 6.5).



**Abbildung 6.5:** Elektronenimpulsverteilung der Einfachionisation von  $N_2$  mit linear polarisierten 780 nm-Laserpulsen. Zur Bestimmung der Null in z-Richtung wurde die Impulskeule ausgenutzt, welche durch Coulomb-Fokussierung besonders schmal ist. Der Schwerpunkt der Keule wurde mit insgesamt sechs Stützpunkten (schwarze Kreise) ermittelt, welche durch einen Gaußfit entlang  $\pi_z$  bestimmt wurden. Die Linie durch jene sechs Punkte definiert  $\pi_z = 0$ . Es ist eine Bedingung in der Impulsrichtung senkrecht zu der dargestellten Ebene  $|p_x| < 0.005au$  gesetzt. Abbildung entnommen aus [53] (Supplemental Material).

Die gemessene Impulsverteilung ist typisch für linear polarisiertes Licht und wird durch Coulomb-Fokussierung sehr scharf zu  $\pi_z = 0$  gezogen. Mittels der sechs gefitteten Punkte wird eine Linie definiert, welche  $\pi_z = 0$  entspricht. Die Fehlerbalken in Abb. 6.4(b) entsprechen den Ungenauigkeiten in der Bestimmung von  $\pi_z = 0$ .

Der statistische Fehler entspricht der Standardabweichung der Formel 6.3 für den Impuls  $\pi_z(z_d, t_{tof}, F) = z_d/t_{tof} - Ft_{tof}/2$  und wird durch

$$\Delta\pi_z = \sqrt{\left(\frac{\Delta z_d}{t_{tof}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta F t_{tof}}{2}\right)^2 + \left(\left(\frac{F}{2} + \frac{z_d}{t_{tof}^2}\right) \Delta t_{tof}\right)^2} \quad (6.4)$$

genähert, wobei  $z_d$  der Abstand der Reaktionszone vom Elektronendetektor,  $F$  die Spektrometerfeldstärke und  $t_{tof}$  die Flugzeit der Elektronen zum Detektor sind. In Tabelle 6.1 sind die experimentellen Parameter und ihre Ungenauigkeiten gezeigt.

$z_d$	$\Delta z_d$	F	$\Delta F$ ( $\cdot 10^{-3}$ )	$t_{tof}$	$\Delta t_{tof}$
390 mm	50 $\mu\text{m}$	1-9 V/cm	0,6-8,7 V/cm	70-260 ns	0,2 ns

**Tabelle 6.1:** Die experimentellen Parameter Abstand zum Detektor  $z_d$ , Spektrometerfeld  $F$  und Elektronenflugzeit  $t_{tof}$  und deren Unsicherheiten.

Die abgeschätzten Ungenauigkeiten in der Tabelle ergeben sich für  $\Delta z_d$  aus der Schwankung des Laserfokus' durch Vibrationen der Kammer bzw. des Lasertisches, für  $\Delta F$  aus der Stabilität des Netzteils, welches die Spektrometerspannung erzeugt und für  $\Delta t_{tof}$  aus der gemessenen Flugzeitverteilung. Unter Verwendung der Tabellenwerte ergibt sich eine Standardabweichung und damit eine Impulsaufösung zwischen  $3 \cdot 10^{-3}$  au und  $14 \cdot 10^{-3}$  au. Ähnliche Werte können auch aus einem Vergleich des gemessenen mit dem gerechneten ZEPs abgeleitet werden. Der experimentelle ZEP ist durch statistische Ungenauigkeiten um etwa  $5 \cdot 10^{-3}$  au breiter als der gerechnete. Obwohl die so ermittelten Ungenauigkeiten relativ groß sind, kann die Mitte des ZEP durch Fitten mit einer Gaußfunktion viel genauer bestimmt werden.

### 6.3 Zusammenfassung

In dieser Analyse konnte die Herkunft des in vielen Elektronenimpulsspektroskopie- Experimenten (z.B. VMI, COLTRIMS) auftauchenden Zero-Energy-Peaks geklärt werden. Obwohl eine Struktur bei niedrigen Impulsen durch Ionisation der Rydbergzustände durch das Spektrometerfeld bereits zu erwarten war, ist die Bildung eines scharfen Peaks dennoch überraschend gewesen. Die Bildung des ZEP konnte mit dem beschriebenen klassischen Modell durch die Dynamik der ionisierten Rydbergelektronen erklärt werden. Ein Indiz für die Richtigkeit dieses Modell liefert die gute Übereinstimmung der Abhängigkeit des ZEP von der Spektrometerfeldspannung zwischen Experiment und Theorie. Die Flugzeit  $t_{tof}$  bzw. der effektive Impuls  $\Pi$  des ZEP verschieben sich in Abhängigkeit des Extraktionsfeldes  $F$  mit  $\Pi^* = -0,6F^{1/4}$ . Da die Verschiebung des ZEP nahe an der Auflösungsgrenze des verwendeten Spektrometers ist, wurde eine Untersuchung der möglichen Fehlerquellen durchgeführt. Der ZEP ist nicht nur eine unerwartete Konsequenz der Starkdynamik, sondern kann auch für die Kalibrierung des elektrischen Feldes für das Experiment verwendet werden.

# Kapitel 7

## Schaltbare Doppelspaltinterferenz

Werden Elektronenwellenpakete an verschiedenen Orten [59, 60, 61] oder zu unterschiedlichen Zeiten [62, 63] gestartet, können sie miteinander interferieren. Die Interferenz ist nur möglich, wenn keine Welcher-Weg Information vorhanden ist [64]. Dabei spielt es keine Rolle, ob sie aktiv gemessen wurde oder nur prinzipiell existent ist. Eine Möglichkeit, die Welcher-Weg Information zu speichern, liegt in der Verschränkung des Elektrons entweder mit einem anderen Teilchen [60, 65] oder mit seiner Umgebung [66, 67, 68]. Eine andere Option ist die Speicherung der Information in einem Freiheitsgrad des Elektrons selbst, z.B. in der Orientierung des Spins [69] oder in einer Impulskomponente [70].

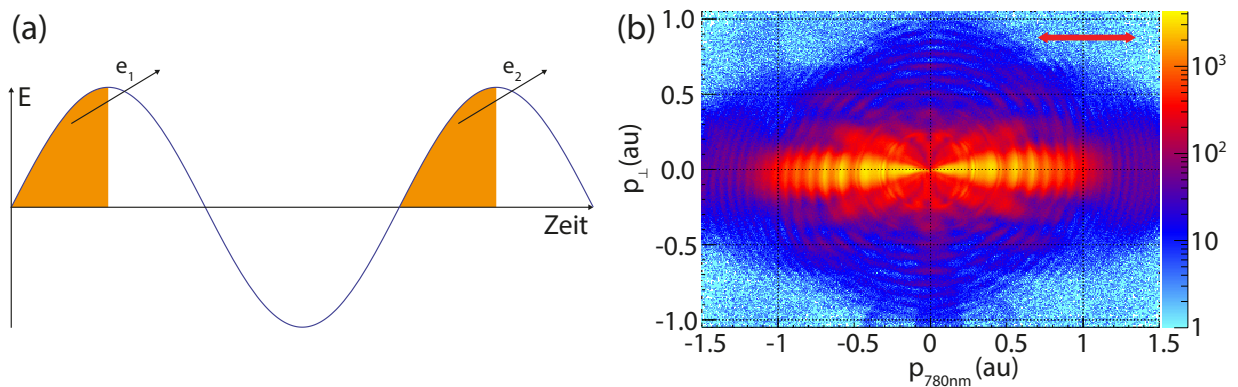
Miteinander interferierende Elektronenwellenpakete werden in einem zeitlich periodischen Femtosekundenlaserpuls geboren und anschließend im elektrischen Feld des Lasers getrieben. Mit dem in dieser Arbeit verwendeten OTC-Feld kann einer der in bisherigen Experimenten unter anderen Strukturen verborgenen Interferenzkanäle sichtbar gemacht werden. Zudem ist es durch Ändern der Phase zwischen den beiden Feldern möglich, diesen Interferenzkanal kontrolliert an- und auszuschalten. Im nächsten Abschnitt 7.1 wird ein Überblick über die möglichen Interferenzkanäle der Elektronen bei Starkfeldionisation gegeben und im darauffolgenden Abschnitt 7.2 ein bisher wenig untersuchter Kanal präsentiert. Im letzten Abschnitt (7.3) dieses Kapitels werden die für die Messergebnisse notwendigen Analyseschritte ausgeführt.

### 7.1 Interferenzen im Photoelektronenimpulsspektrum

Die im Weiteren beschriebenen Interferenzkanäle stellen Doppelspaltexperimente von untypischer Art und Weise dar, denn die Doppelspalte selbst sind „Fenster in der Zeit“ [62]. Die zeitliche Struktur stellt der Laserpuls dar und um miteinander interferieren zu können, müssen die Elektronen denselben Endimpuls im kombinierten Laser- und Coulomb-Feld erreichen. Die bisher entdeckten Elektroneninterferenzkanäle bei Starkfeldionisation werden im Folgenden vorgestellt.

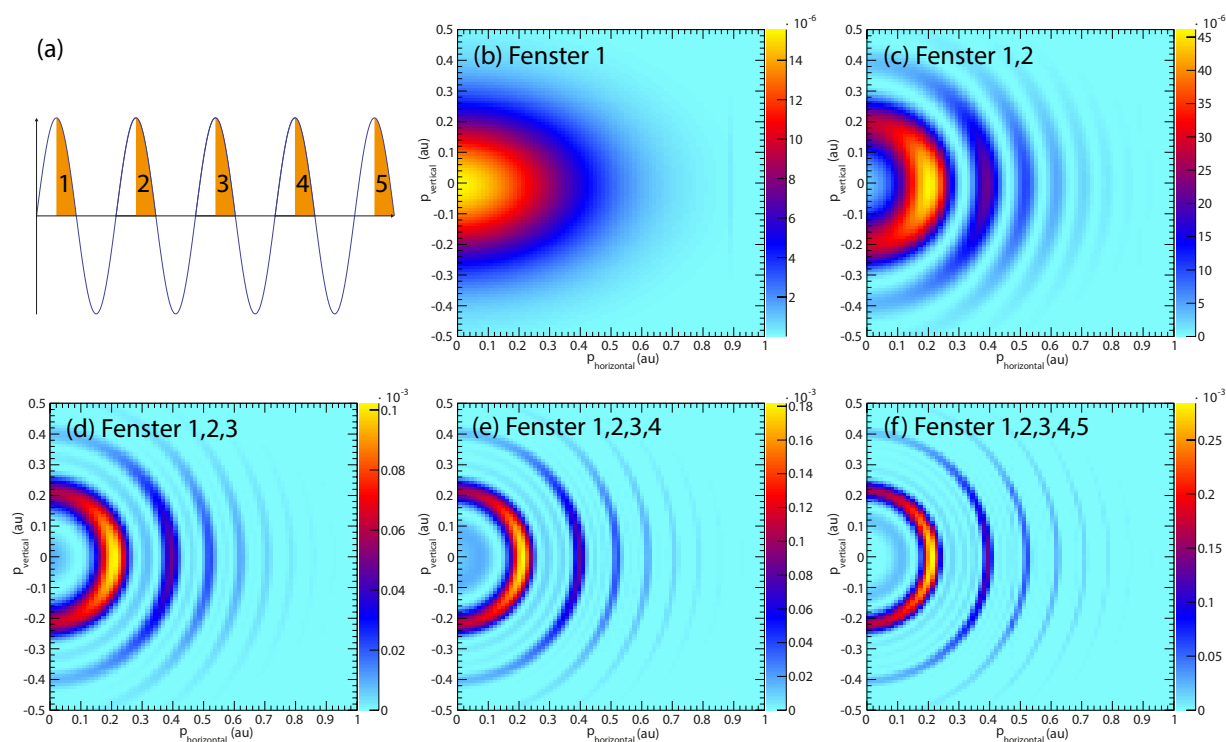
### 7.1.1 ATI-Struktur

Prominente Strukturen in Form von äquidistanten Peaks im Energiespektrum von Photoelektronen bei Starkfeldionisation mit multiperiodischen Pulsen erweisen sich als „above threshold ionization“ (ATI) Peaks [4]. Im Tunnelbild werden sie, anders als im Multiphotonenbild (s. Abschnitt 2.2), durch die Interferenz von periodisch im Laserfeld geborenen Elektronenwellenpaketen gebildet. Die Zeitfenster, die den Doppelspalt für die ATI-Strukturen darstellen, sind in Abb. 7.1(a) gelb markiert.



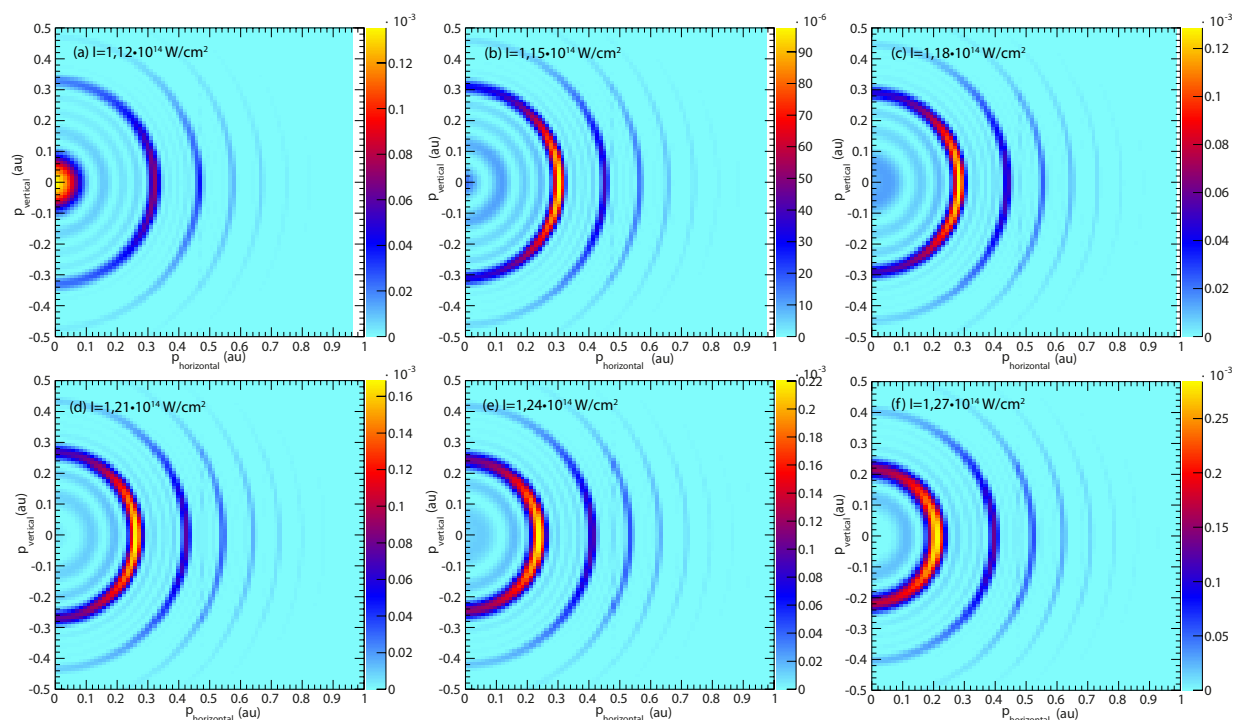
**Abbildung 7.1:** (a) Ausschnitt eines Laserpulses mit gelb markiertem zeitlichen Doppelspalt. Da die interferierenden Elektronenwellenpakete aus verschiedenen Schwingungen des Laserpulses stammen, wird dieser Interferenzkanal auch als Intercycle-Interferenz bezeichnet. In (b) ist eine Elektronenimpulsverteilung der Einfachionisation von Argon mit linear polarisierten 780 nm Laserpulsen gezeigt. Die ATI-Ringe im Impulsspektrum mit der Bedingung  $\theta = 90^\circ \pm 15^\circ$  sind deutlich erkennbar.

Mithilfe der QTMC-Simulation (Kapitel 4) ist es möglich, die ATI-Ringe durch Interferenzen zu erklären. Zur Vereinfachung und besseren Anschaulichkeit wurde der Einfluss des Coulomb-Potentials des verbleibenden Ions an dieser Stelle vernachlässigt. Die Interferenzstruktur ist davon abhängig, wie viele „zeitliche Spalte“ (gelbe Markierungen in Abb. 7.2(a)) zur Interferenz beitragen. Wenn nur jene Elektronen, welche aus demselben Zeitfenster des Laserpulses stammen, in Betracht gezogen werden, dann ist keine Interferenzstruktur vorhanden (Abb. 7.2(b)). Sobald jedoch Elektronen aus einem weiteren Zeitfenster berücksichtigt und alle beim gleichen Impuls landenden Elektronen kohärent überlagert werden, tritt die Interferenz auf (Abb. 7.2(c)). Je mehr zeitliche Spalte zur Interferenz beitragen, desto schärfer werden die ATI-Ringe (Abb. 7.2(c)-(f)). Entsprechend der eingestellten Wellenlänge von 780 nm haben die Peaks einen Abstand von 1,5 eV.



**Abbildung 7.2:** Impulsverteilungen für eine QTMC-Rechnung mit linear polarisiertem Licht der Wellenlänge 780 nm und der Intensität  $1,27 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. In (a) sind die Zeitfenster, in denen die Elektronen tunneln können, gelb markiert. In (b) gibt es keine Interferenz, da nur ein Zeitfenster berücksichtigt wird. Werden mehrere Spalte in Betracht gezogen, kommt es zur Interferenz (c)-(f).

Auch der Versatz der Interferenzringe um die ponderomotive Energie lässt sich durch Interferenzeffekte aus der QTMC-Simulation erklären. Die Erklärung im Multiphotonenbild dafür ist, dass sich solche Zustände, die näher an der Ionisationsschwelle sind, durch das Laserfeld um  $U_p$  verschieben (Starkverschiebung) und die stärker gebundenen Zustände kaum vom Laserfeld beeinflusst werden. Eine genauere Beschreibung dafür findet sich in Abschnitt 9.2, in welchem gezeigt wird, wie dieser Effekt zur Kalibrierung der Intensität des Laserpulses verwendet wurde. In Abb. 7.3 sind gerechnete ATI-Strukturen für Intensitäten des Laserpulses von  $1,12 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> bis  $1,27 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> dargestellt.



**Abbildung 7.3:** Berechnete Impulsverteilungen von Elektronen nach der Ionisation mit linear polarisiertem Licht, welche innerhalb der fünf in Abb. 7.2(a) gezeigten Zeitfenster tunneln. Bei steigenden Intensitäten wandern die ATI-Ringe um den gleichen Betrag nach innen, um den sich auch  $U_p$  verschiebt.

Anhand dieser Impulsverteilungen wurde die Position des ersten ATI-Peaks bestimmt und die Verschiebung ermittelt. Ein Vergleich der aus den Intensitäten berechneten Verschiebung von  $U_p$  mit den aus den Impulsverteilungen abgelesenen Werten ist in Tabelle 7.1 gezeigt.

Intensität $\cdot 10^{14}$ W/cm <sup>2</sup>	$U_p$ (eV)	$\Delta U_p$ (eV)	1. ATI-Ring (eV)	Verschiebung (eV)
1,123	6,37	—	1,41	—
1,151	6,54	0,16	1,25	0,16
1,180	6,70	0,16	1,09	0,16
1,209	6,86	0,16	0,93	0,16
1,238	7,03	0,17	0,78	0,16
1,268	7,20	0,17	0,61	0,17

**Tabelle 7.1:** Aus den Intensitäten berechnete Änderung der ponderomotorischen Energie  $U_p$  und die aus den Impulsspektren (Abb. 7.3) abgelesene Verschiebung des 1. ATI-Rings bei Änderung der Intensität.

Die Verschiebung der ATI-Ringe stimmt innerhalb der Ablesungenauigkeit mit der aus der Intensität berechneten Verschiebung von  $U_p$  überein. Das bedeutet, dass sich die

intensitätsabhängige Verschiebung der ATI-Ringe nicht nur durch die Starkverschiebung im Multiphotonenbild, sondern auch durch Änderung der Phase der Elektronen im Tunnelbild erklären lässt.

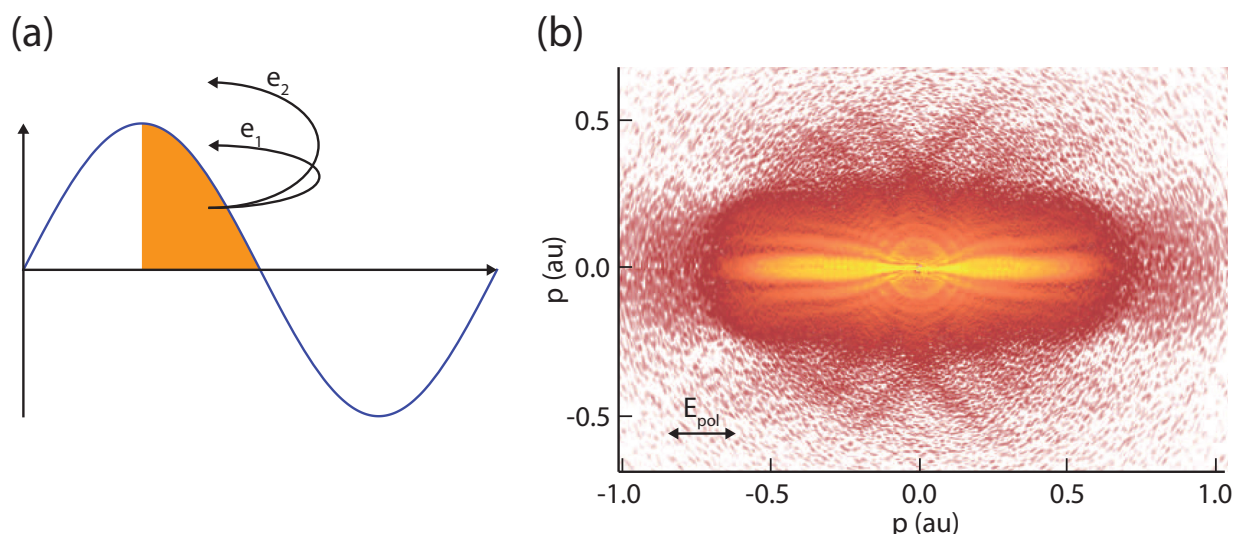
### 7.1.2 Elektronenholographie

Elektronenholographie bei Ionisation in starken Laserfeldern ist ein Prozess, bei dem getunnelte Elektronen mit dem Mutterion wechselwirken und Informationen über sein Potential speichern. Durch Messung von Elektroneninterferenzstrukturen im Impulsraum kann die in den Elektronen steckende Information ausgelesen werden.

#### Forward Rescattering

Ein weiterer Interferenzkanal bei der Ionisation in starken Laserfeldern ist die Interferenz zwischen Elektronen, die in derselben Viertelperiode einer Schwingung des elektrischen Feldes geboren werden. Sie starten zwar zu Zeiten, die dicht beieinander liegen, haben jedoch unterschiedliche Startbedingungen. Der Pfad des einen Elektrons führt dicht am Kern vorbei und wechselwirkt stark mit dem ionischen Potential, während das andere Elektron stets eine größere Entfernung zum Mutterion hat und so kaum von dessen Potential beeinflusst wird (Abb. 7.4(a)). Haben beide Elektronen denselben Endimpuls, ist die Interferenz zwischen ihnen möglich. Dieser Prozess wird „Holographie mit Photoelektronen“ [71] genannt, wobei das gemessene Hologramm zeitliche und räumliche Informationen über das Ion und das Elektron enthält. Die resultierenden Strukturen sind als „Spider-Legs“ (dt. Spinnenbeine) bekannt (Abb. 7.4(b)).

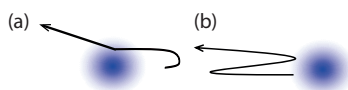




**Abbildung 7.4:** (a) Beide Elektronen ( $e_1$ ,  $e_2$ ) starten in derselben Viertelperiode, haben aber verschiedene senkrechte Startimpulse. So wird eines der Elektronen stark vom Potential des verbleibenden Ions beeinflusst und das andere kaum. Wenn sie identische Endimpulse haben, interferieren sie miteinander und bilden die „Spider-Leg“ Struktur (b), die erstmals von Vrakking et. al. bei einer Messung der Einfachionisation von Xenon mit  $7 \mu\text{m}$  und einer Intensität von  $7,1 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$  gesehen wurden [71]. Abbildung (b) entnommen aus [71].

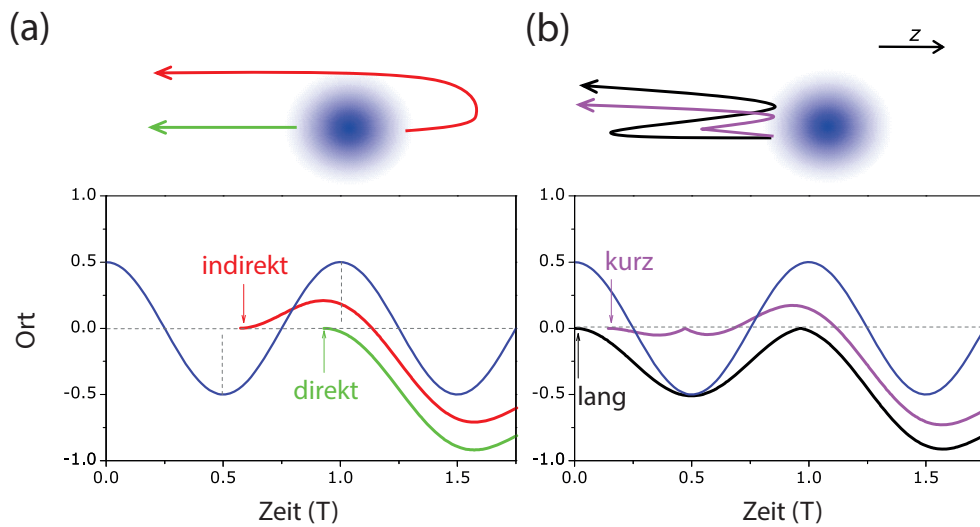
### Backward Rescattering

Im Gegensatz zum „Forward Rescattering“ streut das zurückkommende Elektron beim „Backward Rescattering“ nicht in die Richtung, in die es zurück kommt, sondern in die entgegengesetzte Richtung (Abb. 7.5).



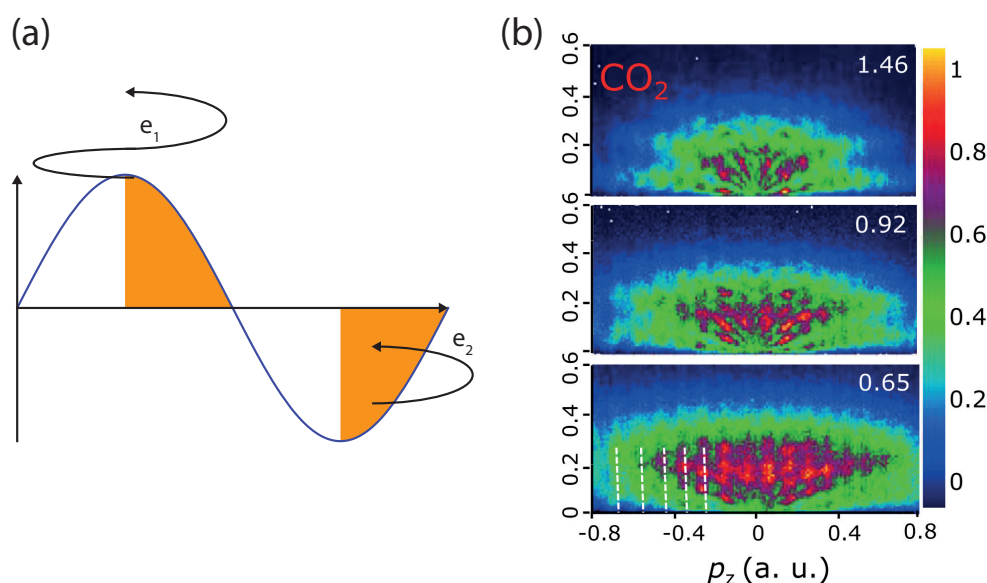
**Abbildung 7.5:** Beispieltrajektorien für Forward- (a) und Backward-Rescattering (b).

Das zweite interferierende Elektron wird wie beim „Forward Rescattering“ kaum vom Ion beeinflusst [72]. Es sind vier Typen von Interferenzen zwischen Elektronen denkbar, welche solchen Trajektorien folgen. Entweder interferieren die lang zurückgestreuten Elektronen mit den Direkten oder Indirekten oder es interferieren die kurz zurück gestreuten Elektronen mit den direkten oder indirekten Elektronen. In Abb. 7.6 sind die erwähnten Trajektorientypen und ihre Bewegung im Laserfeld dargestellt [73].



**Abbildung 7.6:** In dieser leicht modifizierten Abbildung aus [73] sind vier verschiedene Trajektorien dargestellt, die alle zum selben Endimpuls führen können. In (a) sind solche Trajektorien zu sehen, welche nicht am Kern streuen. Die Direkten werden ohne Umwege vom Kern weggetrieben, während die Indirekten in großem Abstand vom Kern vorbeifliegen und kaum mit ihm wechselwirken. Die langen und kurzen Trajektorien in (b) propagieren unterschiedlich lang im Laserfeld, bevor sie am Kern streuen. Bild entnommen aus [73].

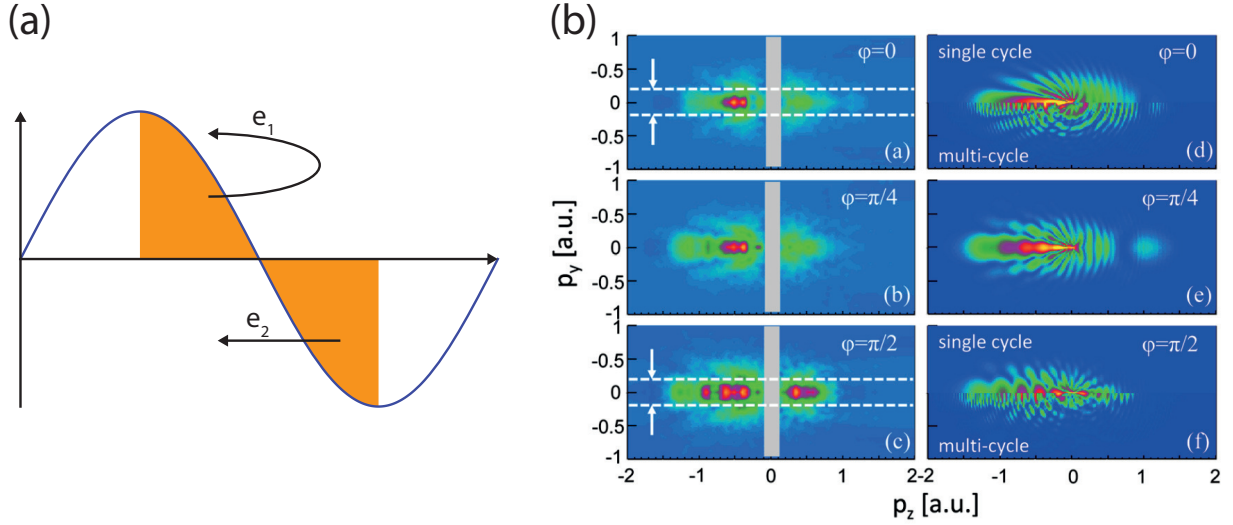
Experimentell wurde bisher nur einer der vier Kanäle beobachtet. Das in Abb. 7.7(b) gezeigte Interferenzmuster aus der Arbeit von Min Li et al [73] rührt aus der Interferenz der lang zurück gestreuten Trajektorien mit den indirekten Trajektorien (Abb. 7.7(a)). Auch hier sind Informationen über die molekulare Struktur im holographischen Photoelektronenimpulsspektrum kodiert.



**Abbildung 7.7:** (a) Die Zeitfenster, aus denen die interferierenden Elektronen stammen und die angedeuteten Trajektorien. In (b) sind die Photoelektronenspektren aus der Arbeit [73] von der Einfachionisation von  $\text{CO}_2$  mit 1320 nm bei verschiedenen Intensitäten zu sehen. Bei der niedrigsten Intensität zeigt sich die Interferenz in Form von vertikalen Streifen am deutlichsten.

### 7.1.3 Intracycle

Im Jahr 2005 wurde ein weiterer Interferenzkanal von Photoelektronen bei Starkfeldionisation entdeckt [62]. Die interferierenden Elektronenwellenpakete werden zu Zeitpunkten innerhalb einer Laserperiode geboren, an denen das elektrische Feld des Lasers zwar in verschiedene Richtungen zeigt, das Vektorpotential jedoch gleich ist (Trajektorien  $e_1$  und  $e_2$  in Abb. 7.8(a)). Im Folgenden wird dieser Kanal als „Intracycle“-Interferenz bezeichnet. Neben den ATI-Interferenzen (Abschnitt 4.3) ist dies der einzige in diesem Kapitel besprochene Interferenzkanal, welcher auch ohne das Coulomb-Potential des Mutterions vorhanden wäre. Er wurde zuerst in einem Experiment mit sehr kurzen Laserpulsen dreier Perioden (6 fs, 760 nm) beobachtet [62]. In einem späteren Experiment wurden Zwei-Farben-Pulse verwendet, um die Phasendifferenz zwischen den beiden Elektronenwellenpaketen nach dem Tunneln zu ermitteln [74]. Da die Intracycle-Strukturen bei Experimenten mit linearen, multiperiodischen Pulsen von prominenteren Strukturen überlagert werden, sind die meisten Arbeiten zu ihnen theoretischer Natur [75, 76, 9, 77] und in den wenigen bisherigen Experimenten tauchen sie nur als Modulation der ATI-Peaks auf (Abb. 7.8(b)) [62, 74].



**Abbildung 7.8:** (a) Die Trajektorien ( $e_1$ ,  $e_2$ ) starten von aneinandergrenzenden Viertelperioden des elektrischen Feldes, bei denen das Vektorpotential gleich ist. Dieser Interferenzkanal wäre auch ohne den Einfluss des Coulomb-Potentials vorhanden. (b) Die linke Hälfte von (b) zeigt die gemessenen Elektronenimpulsverteilungen des Experiments aus [74] bei drei verschiedenen Phasen zwischen den Zwei-Farben-Pulsen. Die Spektren entstanden durch Einfachionisation von Helium bei 790 nm und einer Intensität beider Farben von  $1,0 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Die Intracycle-Interferenz ist dabei als Modulation auf den ATI-Peaks sichtbar. Die rechte Hälfte stellt die entsprechenden TDSE-Rechnungen dar.

## 7.2 Intracycle-Interferenzkanal im OTC-Feld

Mit dem in Kapitel 3.4 beschriebenen Zwei-Farben-Aufbau ist es möglich, den sonst unter anderen Strukturen verborgenen Intracycle-Interferenzkanal (Kapitel 7.1.3) sichtbar zu machen. Durch Löschen oder Erhalten der Welche-Weg-Information kann die Interferenz an- und ausgeschaltet werden. Der folgende Abschnitt basiert auf der bereits veröffentlichten Arbeit [70] und ist hier ausführlicher beschrieben.

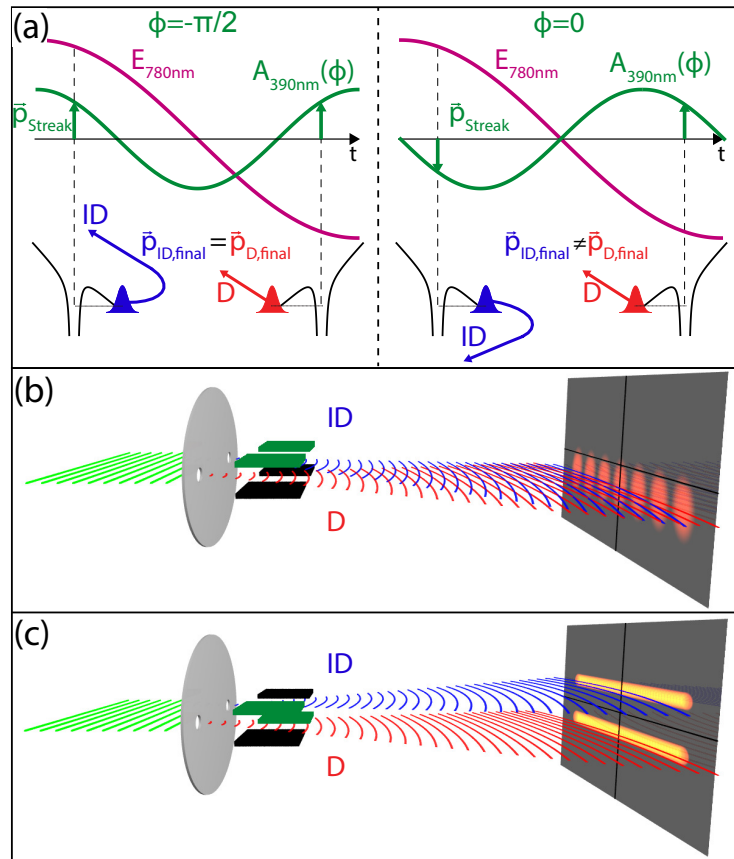
Das „orthogonal two-color“ (OTC) Feld

$$\vec{E} = E_{z,780} \cos(\omega t) \vec{e}_z + E_{y,390} \cos(2\omega t + \phi) \vec{e}_y \quad (7.1)$$

ist in Abb. 7.9(a) bei zwei verschiedenen Phasen  $\phi$  dargestellt. Bei den verwendeten Intensitäten (s. Kapitel 3.4) wird das Tunneln hauptsächlich durch den 780 nm Puls verursacht, während der 390 nm Puls die Elektronenwellenpakete nach der Ionisation nur ablenkt. Im linken Teil von Abb. 7.9(a) ist die Phase so eingestellt, dass das Vektorpotential vom 390 nm Feld für die beiden Trajektorien ID (indirekt) und D (direkt) gleich ist. Ein eingängiges Analogon dazu stellt eine durch einen Doppelspalt laufende ebene Welle dar, die nach den Spalten durch zwei polarisierbare Plattenkondensatoren abgelenkt wird und anschließend auf einem Schirm detektiert wird (Abb. 7.9). Haben beide Kondensatoren die gleiche Polarität (Abb. 7.9(b)), werden die Wellenpakete auch in die gleiche Richtung abgelenkt und

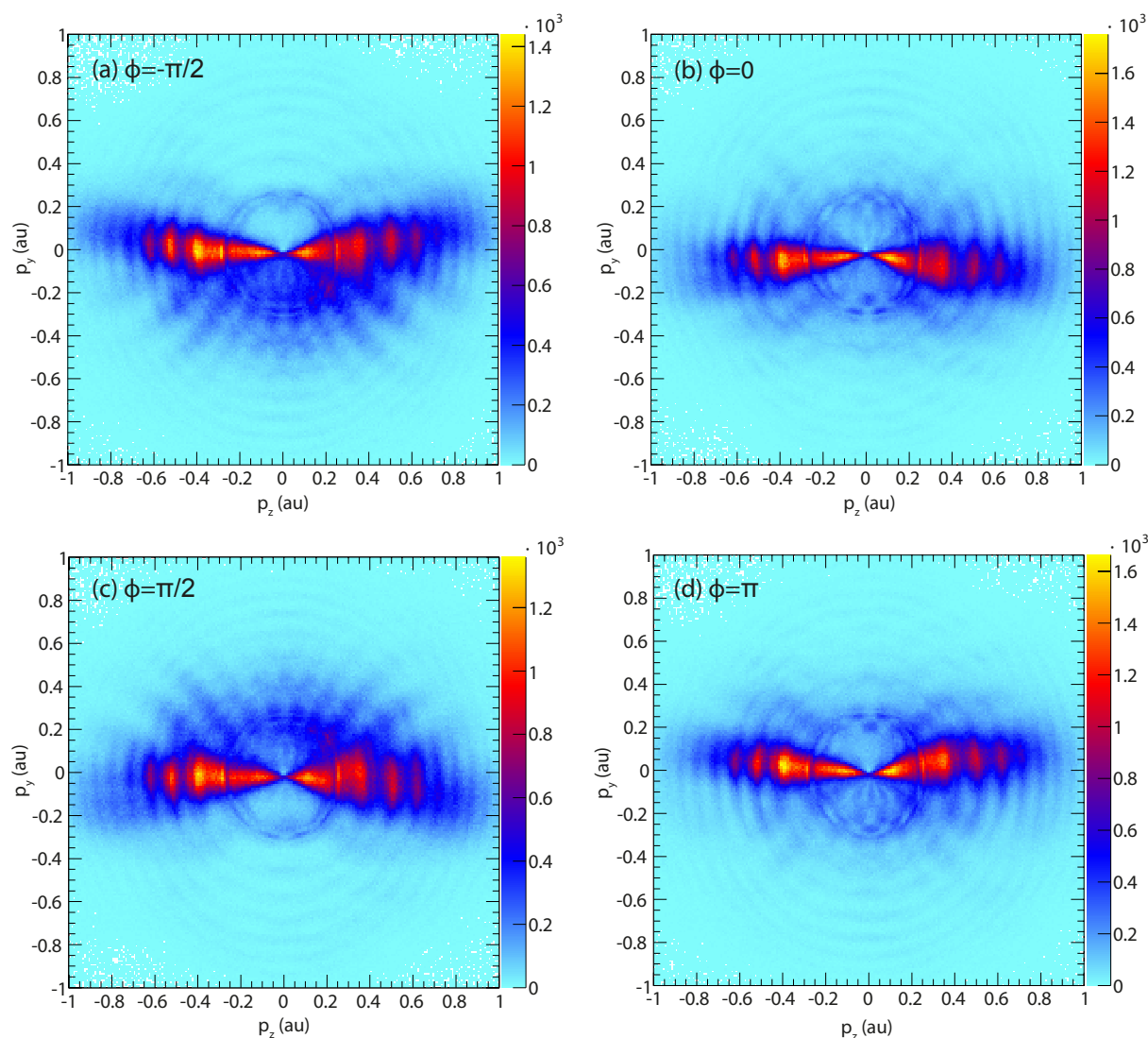
es wird keine Welche-Weg-Information gewonnen. Dies ist auch der Fall für jene Wellenpakete, die zum Zeitpunkt der Ionisation vom gleichen 390 nm-Vektorpotential beeinflusst werden. Wegen der in diesem Fall nicht vorhandenen Welche-Weg-Information wird die Interferenz möglich.

Alternativ kann die Phase zwischen den beiden Pulsen so justiert werden, dass das Vektorpotential vom 390 nm Feld für die beiden Trajektorien ID und D in entgegengesetzte Richtungen zeigt (Abb. 7.9(a), rechts). Nach der Ionisation werden die Wellenpakete in verschiedene Richtungen getrieben, wodurch sie unterscheidbar werden. Aus dieser Markierung der Spalte resultiert das Verschwinden der Interferenz. Das Analogon dazu ist, wenn die Plattenkondensatoren in Abb. 7.9(c) verschieden polarisiert sind, die Wellenpakete in verschiedene Richtungen gelenkt werden und so die Welche-Weg-Information vorhanden ist.



**Abbildung 7.9:** (a) tunnelnde Wellenpakete bei verschiedenen Phasen zwischen den Pulsen. Bei  $\phi = -\pi/2$  ist das 390 nm Vektorpotential für die Wellenpakete ID und D gleich und sie erhalten so den gleichen Endimpuls. Bei  $\phi = 0$  zeigt das Vektorpotential des 390 nm Pulses für ID und D in verschiedene Richtungen, weshalb sie ungleiche Endimpulse haben. (b),(c) stellen das Analogon zu (a) im Ortsraum dar. Eine durch einen Doppelspalt laufende Elektronenwelle wird an den Orten ID und D von einem Plattenkondensator je nach Polarität senkrecht abgelenkt und danach auf einem Schirm detektiert. Werden beide Wellen in die gleiche Richtung abgelenkt (b), kommt es zur Interferenz. Bei Ablenkung der Wellen in verschiedene Richtungen (c) wird die Welche-Weg-Information in der senkrechten Impulskomponente gespeichert und die Doppelspaltinterferenz verschwindet. Abbildung entnommen aus [70].

Die durch das Experiment gewonnenen Impulsverteilungen der Elektronen ändern sich sichtlich für verschiedene Phasen  $\phi$  des OTC-Feldes (Abb. 7.10). In allen Spektren sind ATI-Ringe und ein starker Beitrag durch Coulomb-Fokussierung entlang  $p_y = 0$  vorhanden. Bei den Phasen  $-\pi/2$  und  $\pi/2$  tauchen fingerähnliche Strukturen auf, die im Gegensatz zu den Spider-Leg-Interferenzen nicht bei  $(p_z, p_y) = (0, 0)$  enden.

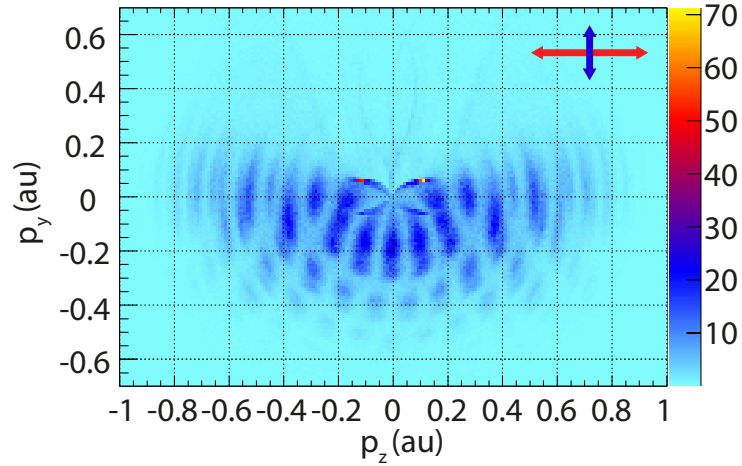


**Abbildung 7.10:** Die Elektronenimpulsverteilung für die Messung mit den in Abschnitt 3.4 gegebenen Laserparametern und der Einfachionisation von Argon. Zur besseren Sichtbarkeit der Intracycle-Interferenzen sind alle Spektren über einen Winkel  $\theta = 90^\circ \pm 15^\circ$  integriert. Bei den Phasen  $-\pi/2$  (a) und  $\pi/2$  (c) sind die fingerähnlichen Interferenzen deutlich erkennbar, während sie bei 0 (b) und  $\pi$  (d) fast vollständig verschwunden sind.

Um die in Abb. 7.10 gezeigten Messdaten zu erhalten, mussten zusätzlich zur COLTRIMS-Kalibrierung (s. 3.3.3) die in Abschnitt 7.3 beschriebenen Analyseschritte durchgeführt werden.

Für die auch in Abschnitt 7.3 angegebenen Laserparameter wurde eine QTMC-Simulation (Kapitel 4.3) durchgeführt. In Übereinstimmung mit dem Experiment zeigen sich auch in der Simulation fingerähnliche Strukturen (Abb. 7.11). Nur der Beitrag im Experiment entlang  $p_y = 0$ , der auf die Coulomb-Fokussierung zurückzuführen ist, kann nicht reproduziert

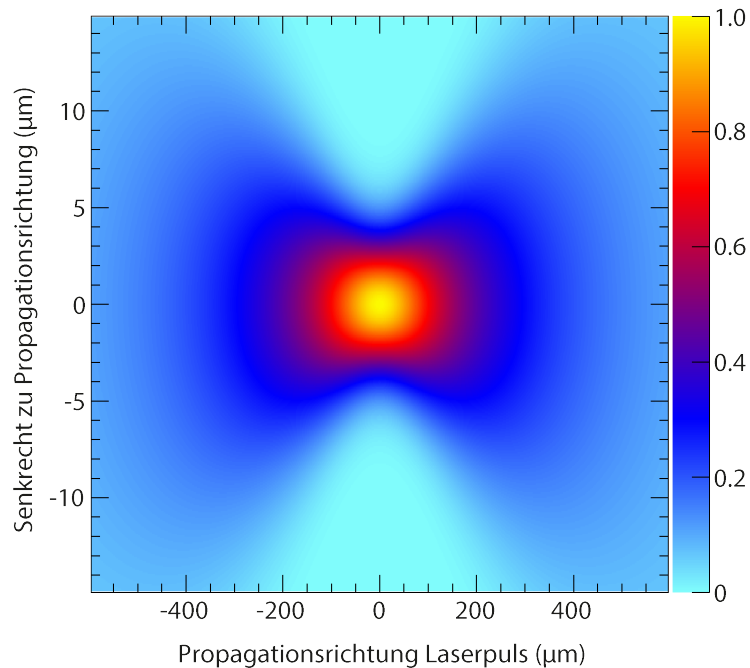
werden. Dies wäre erst mit einer dreidimensionalen (3D) Simulation möglich und nicht mit der hier verwendeten 2D-QTMC-Rechnung.



**Abbildung 7.11:** Das berechnete Photoelektronenimpulsspektrum bei der Phase  $\phi = -\pi/2$  zwischen den Feldern der zwei Farben. Der rote Pfeil entspricht der Polarisationsrichtung des 780 nm Feldes und der blaue der des 390 nm Feldes. Es wurden wie im Experiment die Intensitäten  $I_{780\text{nm}}=1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und  $I_{390\text{nm}}=1,3 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  verwendet. Das Spektrum ist über neun Intensitätspunkte von  $1,2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  bis  $1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  mit dem Schrittabstand  $0,025 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  gemittelt. Neben den ATI-Ringen sind die fingerähnlichen Strukturen, welche im Gegensatz zu den Spider-Legs nicht bei  $(p_z, p_y) = (0,0)$  enden, deutlich zu sehen. Die schmalen, fast horizontalen Streifen hoher Intensität nahe null sind der Coulomb-Fokussierung geschuldet. Sie reproduzieren die experimentellen Daten allerdings nicht ausreichend. Abbildung entnommen aus [70].

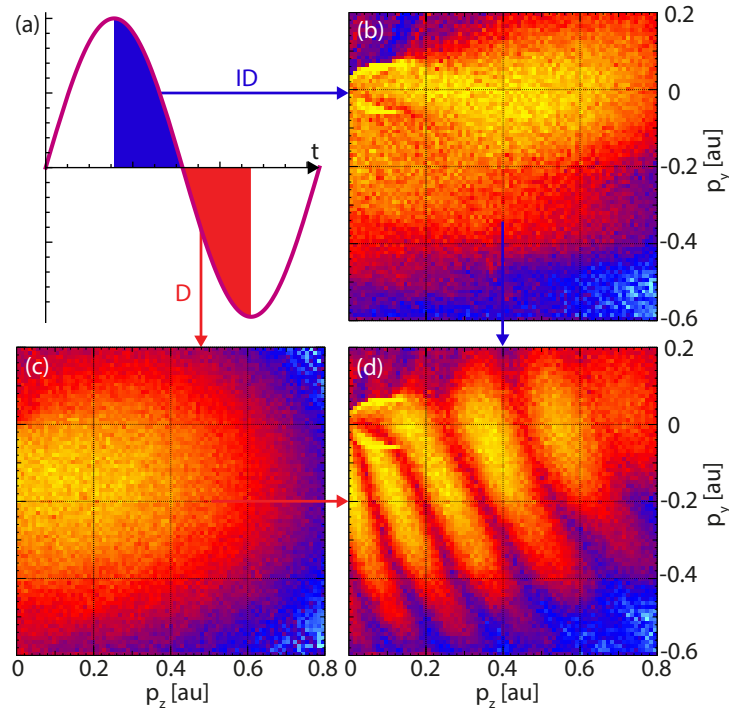
Für den visuellen Vergleich mit dem Experiment wird die Intensität in der Simulation über das Fokusvolumen gemittelt (Abb. 7.12, [29]). Da die Position der ATI-Ringe im Vergleich zur Position der Intracycle-Strukturen viel stärker von der Intensität abhängt, führt diese realistische Mittelung zur Abschwächung des ansonsten dominierenden Beitrags der ATI-Ringe zum Elektronenimpulsspektrum. Das Ergebnis ist über neun Intensitätspunkte von  $1,2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  bis  $1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  mit dem Schrittabstand  $0,025 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  gemittelt.





**Abbildung 7.12:** Die mit den gegebenen Laserparametern und der verwendeten Optik angenommene Intensitätsverteilung im Laserfokus. Die Verteilung ist auf eins normiert.

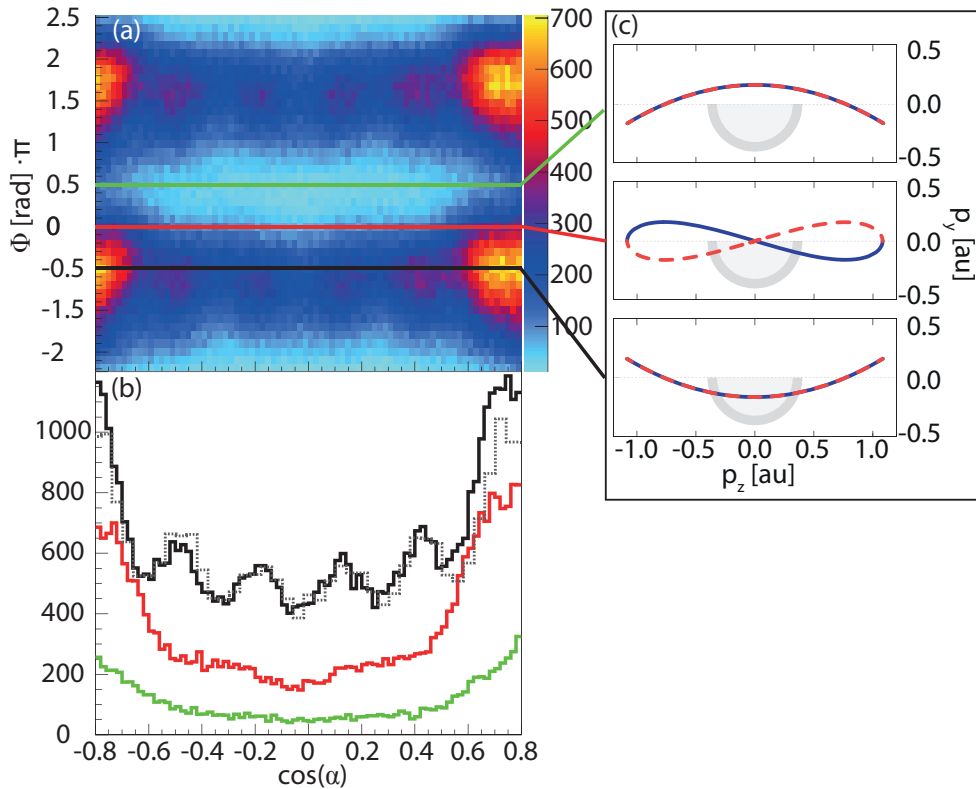
Mit der Simulation wird bestätigt, dass es sich bei den fingerähnlichen Strukturen tatsächlich um Intracycle-Interferenzen handelt. In Abb. 7.13 sind die Trajektorien, welche während einzelner Viertelperioden (blau, rot) tunneln, eingetragen. Der blau markierte Teil entspricht den indirekten (ID) Trajektorien 7.13(b), die durch das 780 nm Feld zurückgetrieben werden und in der Nähe des Kerns vorbeifliegen. Ein Teil dieser Trajektorien führt zur Fokussierung im Impulsraum entlang  $p_y = 0$ , was aber in der Simulation nicht ausreichend reproduziert wird. Die Trajektorien aus der rot markierten Viertelwellenperiode 7.13(c) kommen nicht am Kern vorbei und erhalten direkt jenen Endimpuls, welcher vom Vektorpotential zum Zeitpunkt der Ionisation bestimmt ist. Keine der Impulsspektren weist eine Interferenzstruktur auf. Sobald jedoch die Trajektorien ID und D kohärent addiert werden, kommt die fingerähnliche Intracycle-Interferenz zum Vorschein 7.13(d).



**Abbildung 7.13:** In (a) sind die Zeitfenster dargestellt, in denen die Trajektorien ID und D im 780 nm Feld geboren werden. Die Phase für die mit der QTMC-Simulation berechneten Spektren (b)-(d) zwischen dem 390 nm Feld und dem 780 nm Feld beträgt  $\phi = -\pi/2$ . In (b) sind nur die Trajektorien aufgezeigt, welche aus dem blau markierten Zeitfenster stammen. Diese werden zwar, nachdem sie geboren wurden, umgelenkt, wechselwirken jedoch sehr schwach mit dem verbleibenden Kern, da sie vom Streakingfeld in senkrechter Richtung weg getrieben werden. Die direkten, nicht zurückkehrenden Trajektorien sind in (c) dargestellt. Werden die aus den jeweiligen Zeitfenstern stammenden Trajektorien einzeln aufgetragen (b,c), ist keine Interferenzstruktur zu sehen. Bei kohärenter Addition der Trajektorien aus beiden Zeitfenstern erscheint die Intracycle-Interferenz. Abbildung entnommen aus [70].

Im Folgenden wird genauer darauf eingegangen, inwieweit die Sichtbarkeit der Intracycle-Interferenzen von der Phase zwischen den zwei Farben abhängt. Dazu wird in Abb. 7.14(a) die Phase gegen den Kosinus des Winkels  $\alpha$  mit  $\cos \alpha = p_z/p_{total}$  aufgetragen. In das Histogramm sind jene Ereignisse eingefüllt, welche auf einer Halbkugel im Impulsraum liegen. Die Halbkugel führt genau durch die Finger der Intracycle-Interferenz und ist in Abb. 7.14(c) als grau markierte Fläche angedeutet. Die Linien in Abb. 7.14(b) sind Projektionen entlang der gleichfarbigen Linien aus (a). Die schwarze Linie bei  $\phi = -\pi/2$  spiegelt das Vorhandensein der Intracycle-Interferenz sehr gut wider und ist in Übereinstimmung mit dem berechneten Verlauf (graue Linie). In diesem Fall werden beide Trajektorien ID und D durch das 390 nm Feld in die gleiche Richtung gelenkt. Dies wird auch in Abb. 7.14(c) repräsentiert, in welcher die Summe der Vektorpotentiale des 390 nm und des 780 nm Feldes gezeigt ist. Die blaue Kurve zeigt die erste (ID) und die rot-gestrichelte Kurve die zweite (D) Viertelperiode.  $\phi = -\pi/2$  entspricht der Situation aus Abb. 7.9(b), bei der die

Plattenkondensatoren die durch den Doppelspalt gelaufene Welle in die gleiche Richtung ablenken. Das 390 nm Feld speichert keine Welche-Weg-Information in das Wellenpaket und es ist der maximale Interferenzkontrast vorhanden. Der Kontrast beträgt allerdings nicht 100%, weil ein Teil der indirekten (ID) Trajektorien dem Coulomb-Fokussierungseffekt unterliegen und so nicht mehr in der grauen Halbkugel landen. Dieser Anteil kann so nicht mehr zur Interferenz mit den direkten (D) Trajektorien beitragen, welche diesen Verlust nicht zu spüren bekommen. Die rote Kurve in Abb. 7.14(b) bei der Phase  $\phi = 0$  stellt die umgekehrte Situation dar, in der die Anzahl der Ereignisse in etwa halbiert ist, die Interferenzen jedoch fast vollständig verschwunden sind. Bei dieser Phase zeigt das Vektorpotential des 390 nm Lichts in entgegengesetzte Richtungen für die beiden Viertelperioden. Analog zu Abb. 7.9(c) wird so der Spalt markiert, weil die Wellenpakete unterscheidbar werden. Das Vektorpotential für diese Phase ist wieder in Abb. 7.14(c) dargestellt, wo der blaue und der rote Anteil für diese Phase nicht mehr überlappen. Für die Phase  $\pi/2$  werden die meisten Elektronen in die obere Hälfte des Elektronenimpulsspektrums gelenkt, wobei die Interferenz dort stattfindet und im gezeigten Histogramm nicht mehr sichtbar ist.



**Abbildung 7.14:** Die Abhängigkeit der Intracycle-Interferenz von der Phase zwischen den Feldern der zwei Farben. In (a) ist  $\cos \alpha = p_z/p_{total}$  gegen die Phase  $\phi$  aufgetragen. Zur Vergrößerung des Interferenzkontrasts werden die Bedingungen im Impuls  $0,32 \text{ au} < p_{total} < 0,4 \text{ au}$  und  $p_y < 0$  verwendet, was einer Halbkugel im Impulsraum entspricht. Außerdem sind die Daten über den Winkel  $\theta = 90^\circ \pm 15^\circ$  integriert. In (b) sind drei Projektionen entlang  $\cos \alpha$  für die Phasen  $-\pi/2$  (schwarz),  $0$  (rot) und  $\pi/2$  (grün) gezeigt. Die graue Kurve wurde mit der QMTC-Simulation für die Phase  $-\pi/2$  berechnet und entspricht dem Experiment sehr gut. Die negativen Vektorpotentiale des OTC-Feldes, welche dem Endimpuls der Elektronen ohne Coulomb-Potential entsprechen, sind in (c) dargestellt. Die blauen und roten Kurven stehen für die Zeitfenster, in denen die Trajektorien ID und D geboren werden. Abbildung entnommen aus [70].

## Zusammenfassung

Bei Starkfeldionisation mit den verwendeten OTC-Laserpulsen konnte ein bisher wenig untersuchter Interferenzkanal getunnelter Elektronenwellenpakete sichtbar gemacht werden. Der für die Interferenzen verantwortliche Doppelspalt war in diesem Experiment nicht im Ortsraum definiert, sondern bestand aus Fenstern in der Zeit. Diese bildeten sich durch die Ionisation der Targetatome zu verschiedenen Zeitbereichen des Laserpulses, welche bei der untersuchten Intracycle-Interferenz zwei aneinanderliegende Viertelschwingungen waren. Die beiden Elektronenwellenpakete aus diesen beiden Zeitfenstern konnten je nach Phase zwischen den beiden Farben des OTC-Pulses entweder in die gleiche oder in verschiedene Richtungen gelenkt werden. War Ersteres der Fall, wurde keine Welche-Weg-Information

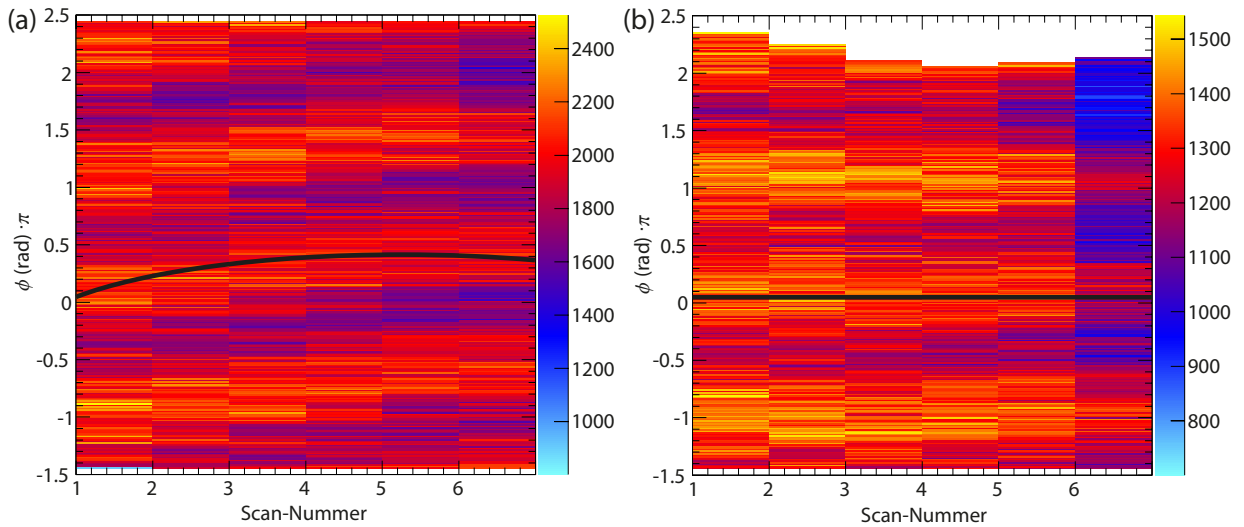
in den Elektronenwellenpaketen gespeichert, wodurch das Zustandekommen der Intracycle-Interferenz möglich war. Bei Letzterem wurden sie in verschiedene Richtungen abgelenkt, waren sie durch eine ihrer Impulskomponenten unterscheidbar, weshalb die Interferenz ausgeschaltet wurde. In diesem Sinne wurde eine vollständige Kontrolle der Interferenz der Elektronenwellenpakete bei Starkfeldionisation erreicht. Eine zukünftige Anwendung dieser Methode könnte die Extraktion der Phase zwischen den getunnelten Wellenpaketen [74] sein.

## 7.3 Phase und Intensität des OTC-Feldes

Die im vorigen Abschnitt gezeigten Messungen und Rechnungen beruhen auf der genauen Bestimmung der absoluten Phase zwischen den beiden Farben und der Intensitäten der Feldkomponenten aus den Messdaten. Außerdem driftete die Phase zwischen den beiden Farben durch äußere Einwirkungen und musste deshalb in der Offlineanalyse korrigiert werden. Im Folgenden werden die notwendigen Verfahren erläutert.

### 7.3.1 Phasenkorrektur

Vor allem durch Temperatur- und Luftfeuchtigkeitsschwankungen kommt es zu langsamen ( $\approx 45^\circ/\text{Stunde}$ ) Drifts der Phase zwischen den beiden Farben. Um diesen Drift in der Offlineanalyse korrigieren zu können, wurde die Phase permanent durchgefahen, indem der Verschiebetisch jede Sekunde um eine Distanz von  $10\ \mu\text{m}$  gefahren wird. Die Gesamtstrecke des Verschiebetischs, welche die Wedges verschiebt, beträgt  $600\ \mu\text{m}$  und deckt etwa eine Phase von  $4\pi$  ab, weshalb ein korrigierter Phasenbereich von  $2\pi$  problemlos möglich ist. Hat der Verschiebetisch die gesamte Länge durchfahren, setzt sie sich zum Ursprungsort zurück und der Scan beginnt von neuem. Bei Auftragen der Scan-Nummer gegen die Phase (Abb. 7.15(a)) ist ein deutlicher Phasendrift erkennbar. Um den Kontrast in den Plots zu erhöhen, wurden in der Analyse nur solche Elektronen ausgewählt, deren Impuls innerhalb von  $p_{390nm} > 0,05$  au und  $p_{780nm} \leq 0,1$  au liegt, da die sehr niederenergetischen Elektronen nur eine sehr schwache Phasenabhängigkeit zeigen. Die Messzeit pro Scan beträgt etwa zwölf Minuten, da die Fahrzeit des Verschiebetischs mit einberechnet werden muss. So entspricht die Zeit in der Abbildung entlang der Scan-Nummer Achse ca. 100 Minuten.

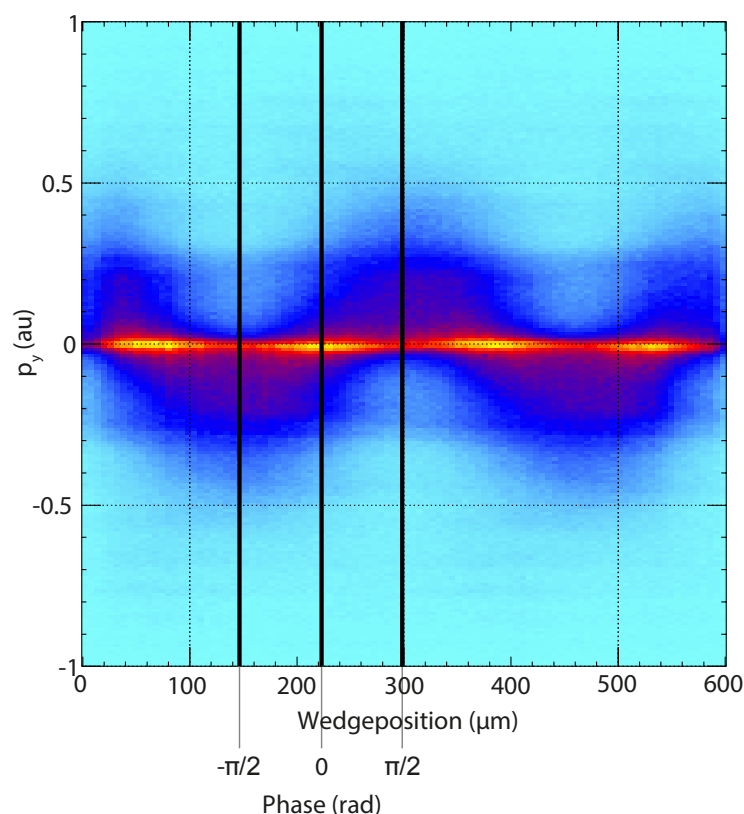


**Abbildung 7.15:** Der Phasendrift in Abhängigkeit der Scan-Nummer für den unkorrigierten (a) und den korrigierten Fall (b). Um den Kontrast zu erhöhen, wurden die Bedingungen im Impuls  $p_z > 0,05$  au und  $-0,1 \text{ au} < p_y < 0,1$  au angewendet. Der Phasenoffset wurde für jede Scan-Nummer einzeln aus (a) bestimmt und in (b) abgezogen, sodass sich eine gerade Linie ergibt.

Die Phase driftet innerhalb von 50 Minuten um etwa  $\pi/2$  (Abb. 7.15(a)). Durch Finden eines Maximums für jede Scan-Nummer, welche entlang der schwarzen Kurve in Abb. 7.15(a) liegt, wird der Korrekturwert bestimmt, der für die Korrektur der Phase notwendig ist. Nach Anwendung der Korrektur liegen die Maxima entlang der schwarzen Geraden (Abb. 7.15(b)).

### 7.3.2 Bestimmung der absoluten Phase

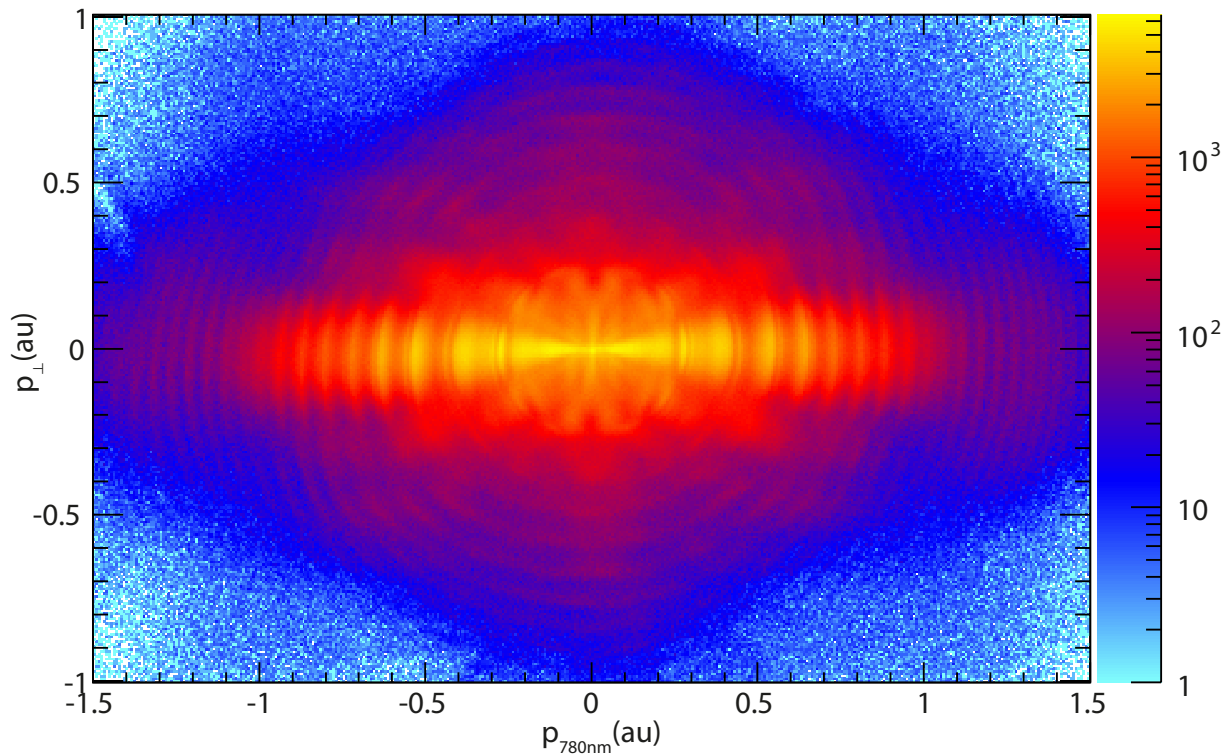
In dem Experiment wird eines der Wedges verschoben und seine Position  $x$  aufgenommen. Die absolute Phasendifferenz  $\Delta\phi = \phi_{780nm} - \phi_{390nm}$  zwischen den beiden Farben ist linear zur Wedgeposition  $\Delta\phi = ax + b$ . Die Konstanten  $a$  und  $b$  können aus Abb. 7.16 entnommen werden. Es werden nur solche Ereignisse berücksichtigt, für welche die Impuls-komponenten der Elektronen entlang des 780 nm Feldes fast null betragen ( $|p_z| < 0.05$  au). So beschränken sich die in das Histogramm in Abb. 7.16 eingefüllten Elektronen nur auf solche, die nahe des Feldmaximums geboren werden ( $\phi_{780nm} = 0$ ). Aus der deutlich sinusförmig oszillierenden Verteilung lässt sich direkt das Vektorpotential des 390 nm Feldes relativ zum Feld bei der Phase  $\phi_{780nm} = 0$  ablesen. Aus der Periode dieser Verteilung lässt sich die Konstante  $a$  bestimmen. Der konstante Phasenversatz  $b$  ist aus dem sinusförmigen Verlauf, markiert durch die schwarzen vertikalen Linien in Abb. 7.16, ermittelbar.



**Abbildung 7.16:** In dem Experiment wird die Wedgeposition  $x$  (horizontale Achse) kontinuierlich gescannt und kann gegen die Impulsverteilung in Richtung der Polarisation des zweiten harmonischen Feldes (vertikale Achse) aufgetragen werden. Aus der Impulsverteilung der abgelenkten Elektronen lässt sich direkt die Phase des absoluten Vektorpotentials ablesen. Die Daten der Abbildung sind über die Impulskomponente in  $x$ -Richtung integriert und in  $z$ -Richtung gilt die Bedingung  $|p_z| < 0.05$  au. Abbildung entnommen aus dem „Supplemental Material“ von [70].

### 7.3.3 Intensitätsbestimmung

Die Intensität des 780 nm Feldes dieser Messungen wurde durch den „cutoff“, d.h. den plötzlichen Abfall der Anzahl der gemessenen Elektronen ab einem bestimmten Impuls (s. Abschnitt 2.3.3) bei linear polarisiertem Licht gleicher Intensität bestimmt. Die Messung dazu ist in Abb. 7.17 zu finden, wo der cutoff-Impuls bei  $p_{780nm}^{\text{cutoff}} = 1,08$  au liegt. Im Falle linearen Lichtes entspricht dieser Impuls einer Energie von  $2U_p = 15,9$  eV. Unter Verwendung der Gleichung 2.5 ergibt sich die Intensität  $I_{780\text{ nm}} = 1,4 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.



**Abbildung 7.17:** Elektronenimpulsverteilung der Einfachionisation von Argon mit linear polarisierten 780 nm Laserpulsen. Die höchste Energie der direkten Elektronen (cutoff) liegt bei  $p_{780nm}^{cutoff} = 1,08$  au, woraus die Intensität von  $I_{780\text{ nm}} = 1,4 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> berechnet werden kann. Das diesem Impulsspektrum entsprechende Energiespektrum ist in Abb. 2.7 dargestellt. Die Impulsverteilung ist über die Impulskomponente senkrecht zu der dargestellten Ebene integriert.

Die Intensität des 390 nm Anteils des OTC-Feldes wurde durch Anpassen des Photoelektronenspektrums der Simulation an das der Messung ermittelt. Sie beträgt  $I_{390\text{ nm}} = 1,3 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>.



# Kapitel 8

## Coulomb-Fokussierung

Die Wechselwirkung der getunnelten Elektronenwellenpakete mit dem verbleibenden Ion bei der Starkfeldionisation erweckte innerhalb der letzten 20 Jahre immer mehr Aufmerksamkeit. Bei linear polarisierten Laserpulsen wird das getunnelte Elektron vom Laserfeld zum Ion zurück getrieben und erfährt dabei transversal zu seiner Bewegungsrichtung eine Fokussierung in die Richtung des Ions [30]. Diese sog. Coulomb-Fokussierung ist verantwortlich für die Erhöhung der Wahrscheinlichkeit der nichtsequentiellen Doppelionisation (NSDI) [30], der Erzeugung höherer Harmonischer (HHG) [78] und das Erreichen hoher Elektronenenergien durch Rückstreuung [10], da alle drei Effekte auf der Wechselwirkung zwischen dem verbleibenden Ion und dem zurückkommenden Elektronenwellenpaket beruhen. Auch die Wahrscheinlichkeit für das Einfangen des Elektrons in einen hoch angeregten Rydbergzustand [79] wird durch den Fokussierungseffekt erhöht.

Neben der Coulomb-Fokussierung sind auch die „Low Energy Structure“ (LES) [33], die Zero Kinetic Energy Structure (Kapitel 6), die doppelt angeregten Zustände (Abschnitt 4.3) sowie die Interferenzerscheinungen im Photoelektronenspektrum, wie die in Abschnitt 7.1.2 beschriebene Elektronenholographie, Konsequenzen der Wechselwirkung von Elektron und Ion nach dem Tunneln in starken Laserfeldern. Später wurde zudem der Einfluss des ionischen Potentials auf nicht zurückkommende Elektronen untersucht, indem das Elektronenimpulsspektrum für verschiedene Elliptizitäten des Laserfeldes gemessen wurde [80, 81]. Dabei konnten zwei Quellen der Coulomb-Fokussierung gefunden werden: Zum einen die Anziehungskraft des attraktiven Coulomb-Potentials auf das Elektron direkt nach dem Tunneln und zum anderen die Fokussierung während der Propagation. Ersteres ist weitestgehend unabhängig von der Polarisation des elektrischen Feldes, während Letzteres stark davon beeinflusst wird. Wie bereits in Kapitel 7 gezeigt, werden in einem anderen aktuellen Forschungsgebiet mit komplexeren elektrischen Feldern, wie dem orthogonal polarisierten Zwei-Farben-Feld (OTC) mit einer schwachen zweiten Harmonischen, Elektronen nach der Ionisation abhängig von der Phase zwischen den beiden Farben abgelenkt.

Diese beiden Forschungsbereiche werden im Folgenden zusammengeführt und untersucht, wie sich die durch das ionische Potential beeinflussten Elektronen im OTC-Feld verhalten. Dabei wird die Abhängigkeit der Signatur der Coulomb-Fokussierung von der Phase zwischen den beiden Farben des OTC-Feldes analysiert. Dazu werden die Impulse der

Fragmente aus der Einfachionisation von Argon im starken OTC Laserfeld aufgezeichnet

Die Signatur der Coulomb-fokussierten Elektronen wird in der Literatur „cusp-like“ [82], zu deutsch spitzenartig, genannt. Diese Bezeichnung wird so auch im Weiteren verwendet. Mittels der Impulsverteilungen der Coulomb-fokussierten Elektronen wurde festgestellt, dass die spitzenartige Struktur scheinbar nicht durch das elektrische Feld der zweiten Harmonischen beeinflusst wird, während der Rest des Impulsspektrums entsprechend der Phase zwischen den beiden Farben vom zweiten harmonischen Feld abgelenkt wird.

In den folgenden Abschnitten erfolgt eine Erklärung dieses Effekts mithilfe der auf Trajektorienberechnung basierenden Simulation (Kapitel 4.3). Der Einfluss der Coulomb-Potentials ist in diesem Modell enthalten, sowie die erwähnten Rückstreu- bzw. Elektroneneinfangeffekte.

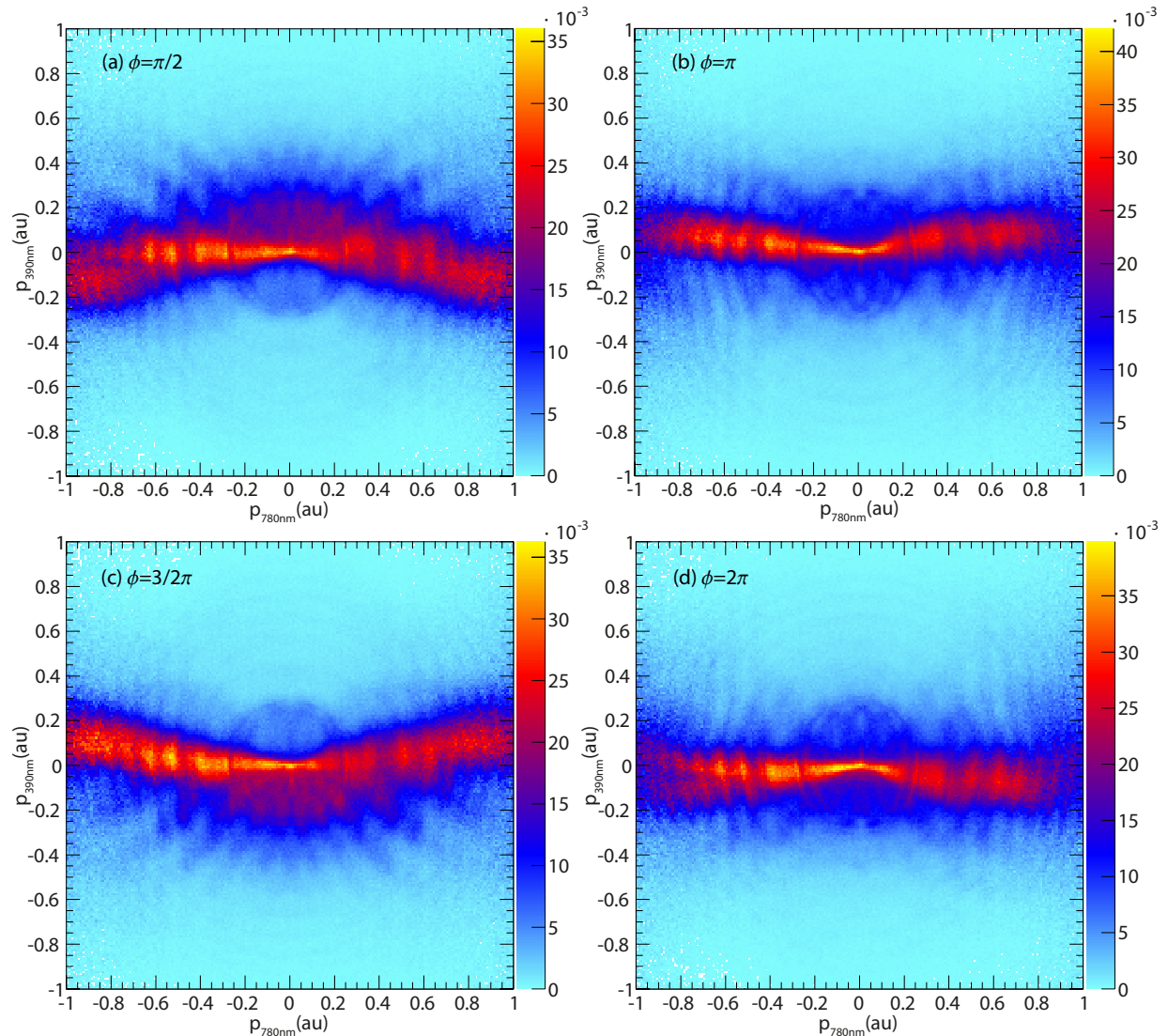
Der Aufbau des Kapitels ist wie folgt: zuerst werden die experimentellen Daten vorgestellt, welche denen aus dem vorigen Kapitel 7 entsprechen. Der dem folgenden Abschnitt zugrundeliegende physikalische Effekt der Coulomb-Fokussierung hat jedoch seinen Ursprung nicht in Interferenzeffekten, sondern im Zusammenspiel des OTC-Feldes mit dem Coulomb-Potential. Anschließend werden jene Trajektorien, welche zur Coulomb-Fokussierung führen, identifiziert und danach der Grund für die Überhöhung der Anzahl der Elektronen innerhalb der spitzenartigen Struktur erläutert.

## 8.1 Experimentelle Beobachtung

Das OTC-Feld wird wie in Kapitel 7 durch die Gleichung 7.1 beschrieben, wobei  $\phi$  die Phase zwischen den beiden Pulsen darstellt. Der experimentelle Aufbau entspricht dem aus Kapitel 3.4. Bei Tunnelionisation von Argon durch dieses OTC-Feld ist zu erwarten, dass die frei werdenden Elektronen den Impuls entsprechend des negativen Vektorpotentials des OTC-Feldes zum Zeitpunkt der Ionisation erhalten. Die gemessene Elektronenimpulsverteilung der Einfachionisation von Argon mit dem OTC-Feld ist in Abb. 8.1 für vier verschiedene Phasen  $\phi$  dargestellt. Impulsverteilungen von derselben Messung mit einer anderen Darstellung waren bereits im vorigen Kapitel in Abb. 7.10 gezeigt. In Abb. 8.1 wurden im Gegensatz zu Abb. 7.10 keine Bedingung auf den Winkel  $\theta$  gesetzt und die Spektren wurden Spaltenweise so normiert, dass die Summe der Counts in jeder Spalte Eins ergibt. Die Intensitäten der einzelnen Farben betragen dabei  $I_{780\text{nm}}=1,4 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> und  $I_{390\text{nm}}=1,3 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>.

Neben vielen Interferenzstrukturen, welche größtenteils bereits in Kapitel 7 untersucht wurden, sind zwei Merkmale der Impulsverteilungen besonders hervorzuheben. Das erste ist ein schwächer ausgeprägter und verwaschener Anteil der Elektronen, welche dem negativen Vektorpotential des 390 nm Feldes folgen, erkennbar. Diese Gruppe von Elektronen wird in der Literatur als „direkte Elektronen“ bezeichnet und sind besonders deutlich in Abb. 8.1(a),(c) zu sehen, in denen die Ablenkung der Elektronen in positive  $p_{390\text{nm}}$  bzw. negative  $p_{390\text{nm}}$  Richtung maximal ist. Das zweite wichtige Merkmal ist die spitzenartige Linie entlang  $p_{390\text{nm}} = 0$ , welche nur schwach vom Feld der zweiten Harmonischen beeinflusst wird. Insbesondere scheint der Anteil um  $\{p_{780\text{nm}}, p_{390\text{nm}}\} = \{0, 0\}$  herum nicht vom

390 nm Feld beeinflusst zu werden.

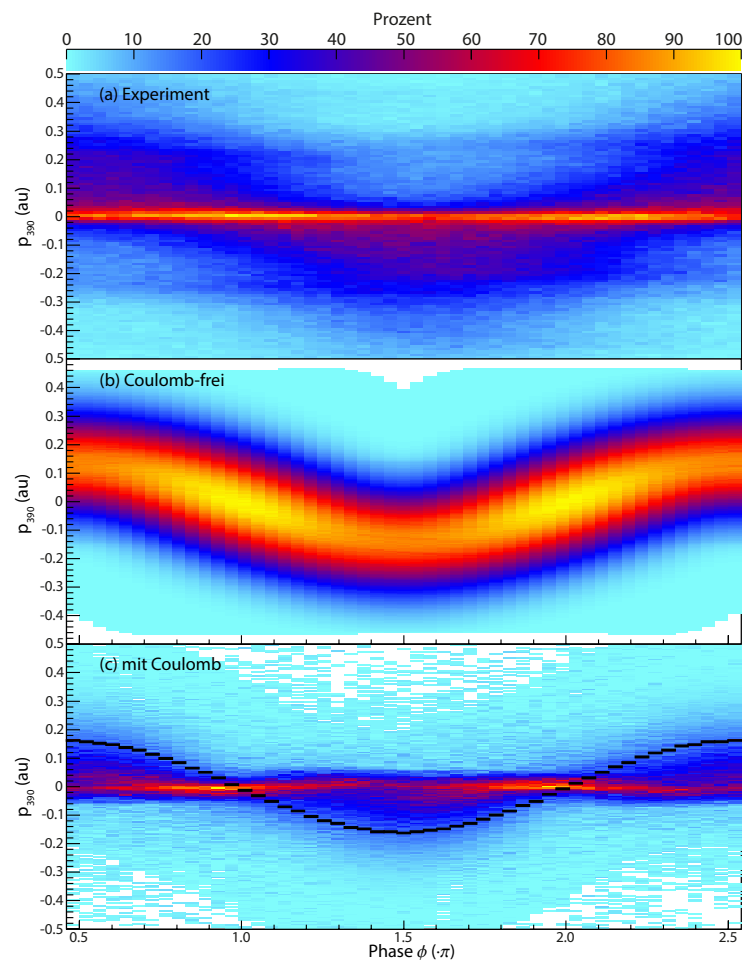


**Abbildung 8.1:** Photoelektronimpulsverteilungen in der Polarisationssebene der Einfachionisation von Argon mit dem OTC-Laserfeld mit den Intensitäten  $I_{780\text{nm}} = 1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und  $I_{390\text{nm}} = 1,3 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  für vier verschiedene Phasen zwischen den beiden Farben:  $\phi = \pi/2$  (a),  $\phi = \pi$  (b),  $\phi = 3/2\pi$  (c) und  $\phi = 2\pi$  (d). Es handelt sich um dieselben Messdaten wie in Abb. 7.10. Um das Merkmal der roten Linie entlang  $p_{390\text{nm}} = 0$  besser sichtbar zu machen, wurden alle Spektren spaltenweise so normiert, dass die Summe der Counts in jeder Spalte Eins ergibt. Die Histogramme sind über die Impulskomponente in x-Richtung integriert.

Beide Merkmale, die diffuse Impulsverteilung der direkten Elektronen und die spitzenartige Struktur der nicht ablenkbaren Elektronen, sind bei Auftragen der Phase  $\phi$  zwischen den beiden Phasen gegen den Impuls in 390 nm Richtung deutlich zu erkennen.

Um den Anteil, der kaum vom 390 nm Feld beeinflusst wird, besser untersuchen zu

können, wurde für den entsprechenden Plot in Abb. 8.2 die Bedingung in 780 nm Richtung  $|p_{780nm}| \leq 0,05$  au und in der Richtung senkrecht zur Polarisationssebene  $|p_{\perp}| \leq 0,05$  au gewählt. In Abb. 8.2(a) ist die experimentelle Impulsverteilung mit den genannten Bedingungen aufgetragen und beide erwähnten Merkmale sind hervorragend zu sehen. Der breite sinusförmig oszillierende blaue Halo entspricht den direkten Elektronen und wurde für die Kalibrierung der Phase  $\phi$  verwendet (Abschnitt 7.3.2). Die schmale rote Linie entlang  $p_{390nm} = 0$  oszilliert dagegen nicht und entspricht den nicht ablenkbaren Elektronen. Es scheint, als ob dieser Teil der Elektronenimpulsverteilung, unabhängig von der Phase, nichts vom 390 nm Feld zu spüren bekommt.

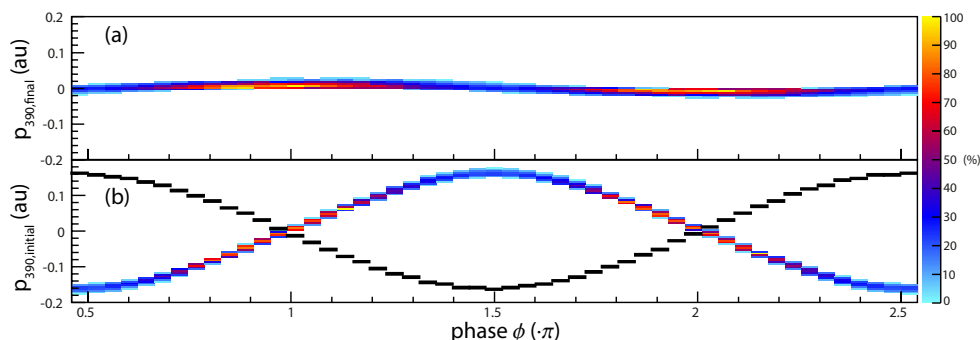


**Abbildung 8.2:** Absolute Phase  $\phi$  zwischen den beiden Farben gegen die Impulskomponente in 390 nm-Richtung für gemessene Daten (a), die Simulation ohne Coulomb-Potential (b) und die Simulation mit Coulomb-Potential (c). Zur besseren Sichtbarkeit der relevanten Merkmale ist in allen Histogrammen eine Bedingung im Impuls  $|p_{780nm}| \leq 0,05$  au und  $|p_{\perp}| \leq 0,05$  au gewählt.

## 8.2 Coulomb-freier Fall

Um die Herkunft der beiden Merkmale besser verstehen zu können, wurde eine Monte Carlo Simulation durchgeführt, welche sehr ähnlich zu der in Kapitel 4 beschriebenen QTMC-Simulation ist. Die quantenmechanische Phase der Elektronen wurde hier jedoch vernachlässigt, da die zu untersuchenden Strukturen nicht durch Interferenzeffekte hervorgerufen werden. Zudem konnte das Coulomb-Potential ein- und ausgeschaltet werden, um festzustellen, welche Effekte ihren Ursprung in der Wechselwirkung mit diesem Potential haben. Die gerechnete Abhängigkeit der Impulsverteilung der Elektronen entlang  $p_{390nm}$  von der Phase  $\phi$  des OTC-Feldes unter Vernachlässigung des Coulomb-Potentials ist in Abb. 8.2(b) dargestellt. Erwartungsgemäß resultiert daraus eine sinusförmig oszillierende Verteilung, welche dem negativen Vektorpotential des 390 nm Feldes zum Zeitpunkt der Ionisation entspricht. Dieser Verlauf hat die gleiche Phase und auch in etwa die gleiche Amplitude, wie der blaue Halo aus Abb. 8.2(a). Daraus folgt, dass es sich bei den Elektronen, welche den blauen Halo bilden, tatsächlich um direkte Elektronen handelt.

Da der Anteil der nicht ablenkbaren Elektronen im Impulsspektrum nicht durch eine Rechnung unter Vernachlässigung des ionischen Potentials reproduziert wird, ist anzunehmen, dass es sich bei der schmalen Verteilung der „nicht ablenkbaren“ Elektronen um einen Coulomb-Effekt handelt. Dementsprechend müssen die stark vom ionischen Potential beeinflussten Elektronen irgendwann während ihrer Propagation im oszillierenden Laserfeld einen kleinen Abstand vom Ion gehabt haben. Um diese Gruppe von Elektronen herauszufiltern, wird in der Simulation der minimale Abstand der Elektronen vom Ion ermittelt, indem der Abstand zum Ion entlang der Elektronentrajektorie zu jedem Zeitschritt bestimmt wird. Sobald die simulierte Verteilung aus Abb. 8.2(b) mit der Bedingung, dass sich die Elektronen dem Ion irgendwann mindestens 1,5 au genähert haben, in das Histogramm eingefüllt wird, werden näherungsweise solche Elektronen herausgefiltert, welche stark vom Coulomb-Potential beeinflusst würden. Bei auftragen der Phase gegen den Elektronenimpuls in 390 nm Richtung mit der genannten Bedingung, ergibt sich eine schmale und kaum oszillierende Impulsverteilung (Abb. 8.3(a)). Diese Verteilung spiegelt den Anteil der „unablenkbaren“ Elektronen im gemessenen Impulsspektrum wider. Um die Herkunft jener Elektronen, welche nahe am Kern vorbei fliegen und letztendlich den Impuls  $p_{390nm} \approx 0$  haben, zu bestimmen, ist in 8.3(b) ihr Anfangsimpuls direkt nach der Ionisation aufgetragen. Die schwarze Linie in dem Bild entspricht dem negativen Vektorpotential des 390 nm Feldes zum Zeitpunkt der Ionisation (Maximum 780 nm Feld) und entspricht fast genau der horizontal gespiegelten Anfangsimpulsverteilung. Daraus folgt, dass für Elektronen, welche nahe am Kern vorbei kommen, der Anfangsimpuls genau durch das Vektorpotential des Streakingfeldes kompensiert wird.

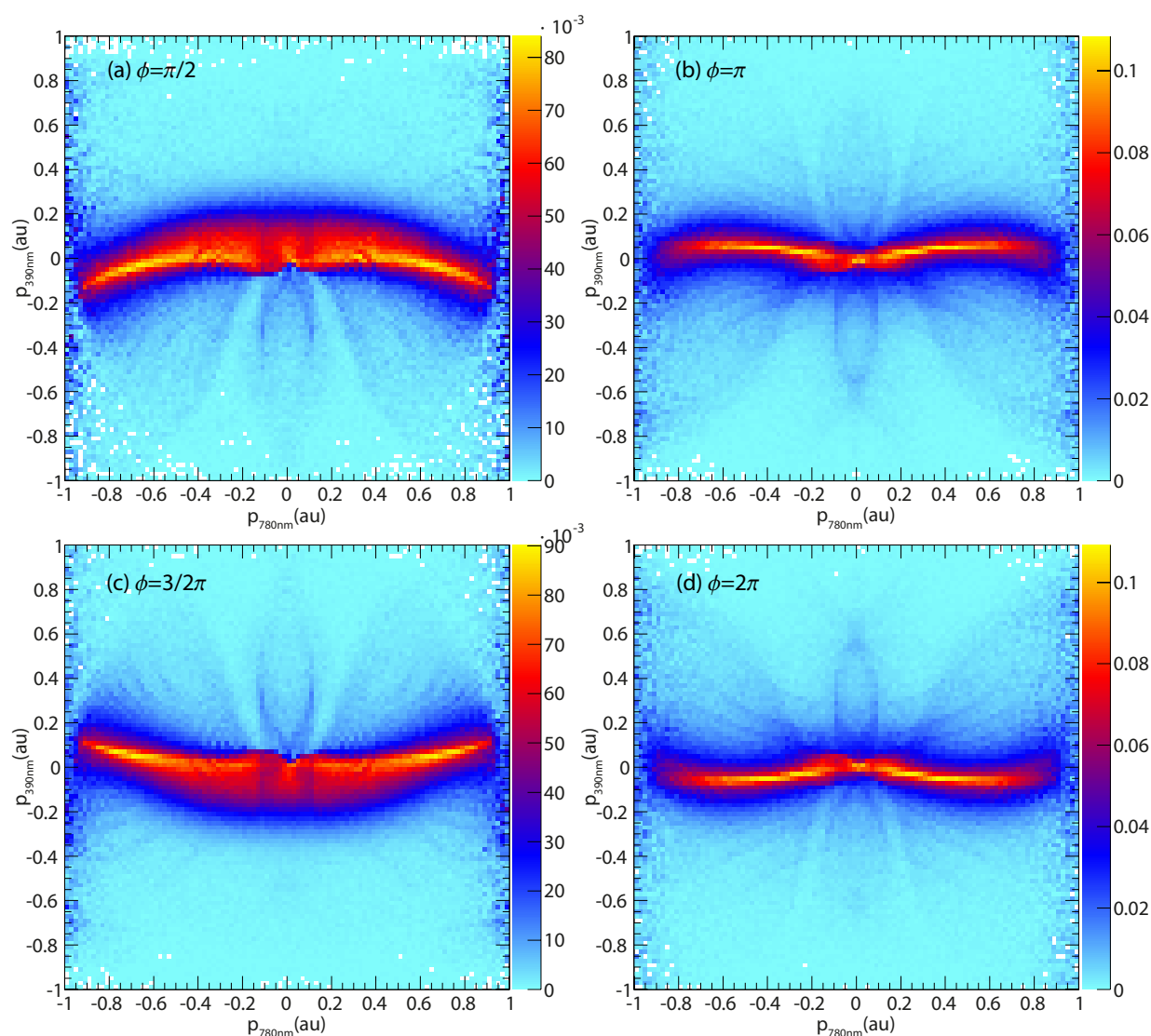


**Abbildung 8.3:** Gerechnete Abhängigkeit des Impulses in 390 nm Richtung von der Phase zwischen den beiden Farben unter Vernachlässigung des Coulomb-Potentials für Elektronen, welche am verbleibenden Ion in einem Radius von  $\leq 1,5$  au vorbei fliegen. In (a) ergibt der aufgetragene Endimpuls eine schmale, kaum oszillierende Verteilung, welche das Merkmal der unablenkbaren Elektronen der Messung reproduziert. Die Impulse direkt nach dem Tunnelvorgang entsprechen genau dem horizontal gespiegeltem negativen Vektorpotential (schwarze Kurve), woraus für nahe am Kern vorbei fliegende Elektronen folgt, dass  $p_{final} = p_{initial} + p_{streak} \approx 0$ .

Die Untersuchung dieses Kompensationsmechanismus' gilt nur für den Coulomb-freien Fall und dient zum Vergleich mit dem Fall mit Coulomb-Potential. So kann ein besseres Verständnis über die hauptsächlich durch das ionische Potential verursachten Effekte gewonnen werden.

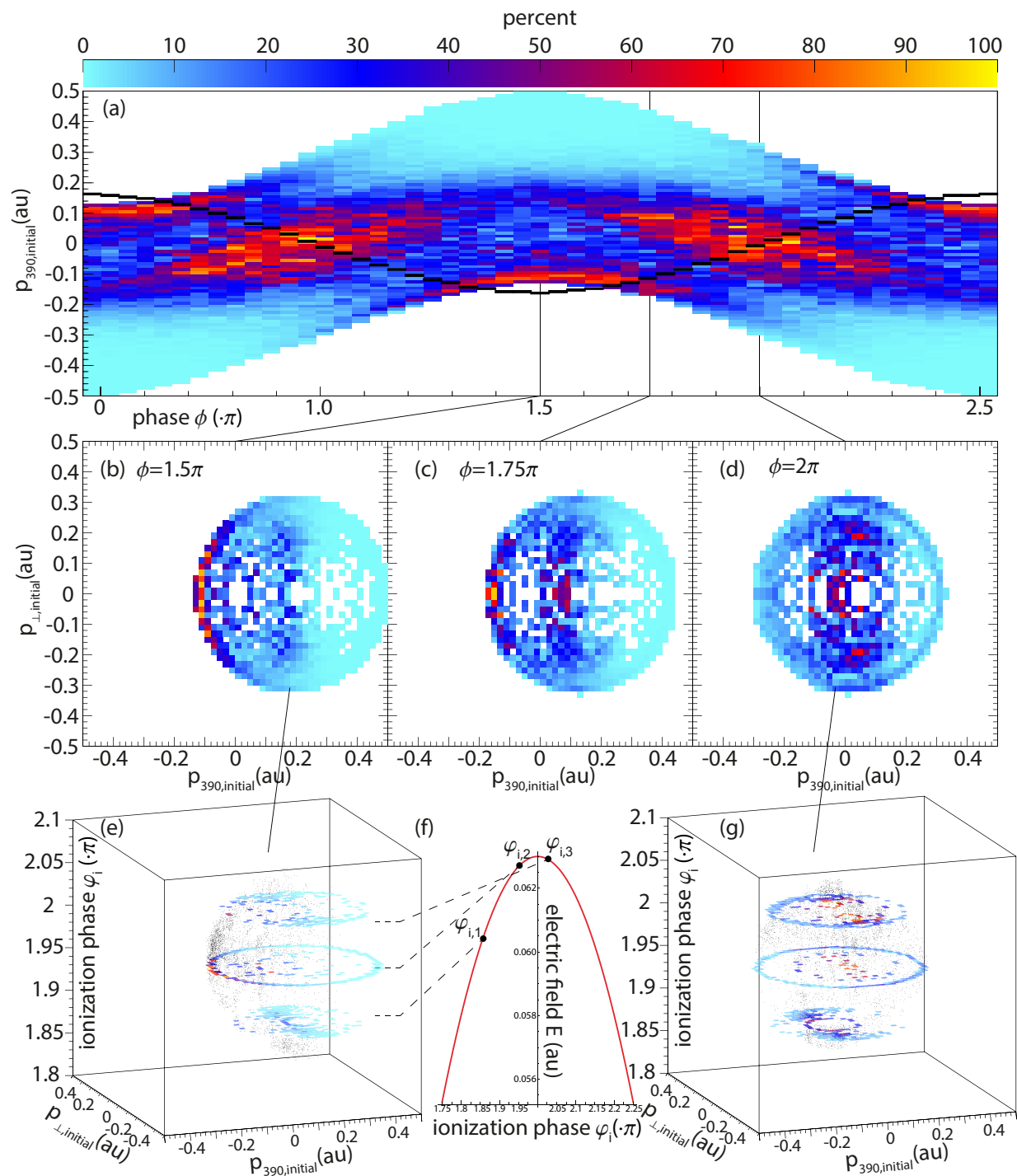
### 8.3 Coulomb-Fall

Sobald das  $1/r$ -Potential in den Simulationen berücksichtigt wird, ergeben sich Elektronenimpulsverteilungen, die den gemessenen Verteilungen bis auf die Interferenzeffekte ähnlich sind (Abb. 8.4). Beide Merkmale, der Halo und die spitzenartige Struktur werden durch die simulierten Verteilungen reproduziert.



**Abbildung 8.4:** Simulierte Elektronenimpulsverteilung zu den gleichen vier Phasen wie in Abb. 8.1. Die Intensitäten betragen auch in der Rechnung  $I_{780\text{nm}} = 1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und  $I_{390\text{nm}} = 1,3 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . Die Spektren sind ebenfalls Spaltenweise so normiert, dass die Summe der Einträge Eins ergibt.

Beim Darstellen der Abhängigkeit der Impulsverteilung in 390 nm Richtung von der Phase zwischen den beiden Farben (Abb. 8.2(c)), sind die Merkmale noch deutlicher sichtbar. Wie zu erwarten, folgt der blaue Halo, der die direkten, wenig vom ionischen Potential beeinflussten Elektronen repräsentiert, dem Verlauf des negativen Vektorpotentials des Streakingfeldes (schwarze Kurve). Um nachvollziehen zu können, welche Elektronen zur spitzenartigen Struktur entlang  $p_{390\text{nm}} = 0$  beitragen, ist ihr Anfangsimpuls im Vorhandensein des Coulomb-Potentials für ein schmales Fenster ( $|p_{390}| \leq 0,01 \text{ au}$ ,  $|p_{780}| \leq 0,05 \text{ au}$ ,  $|p_{\perp}| \leq 0,05 \text{ au}$ ) in Abhängigkeit der Phase in Abb. 8.5(a) dargestellt.



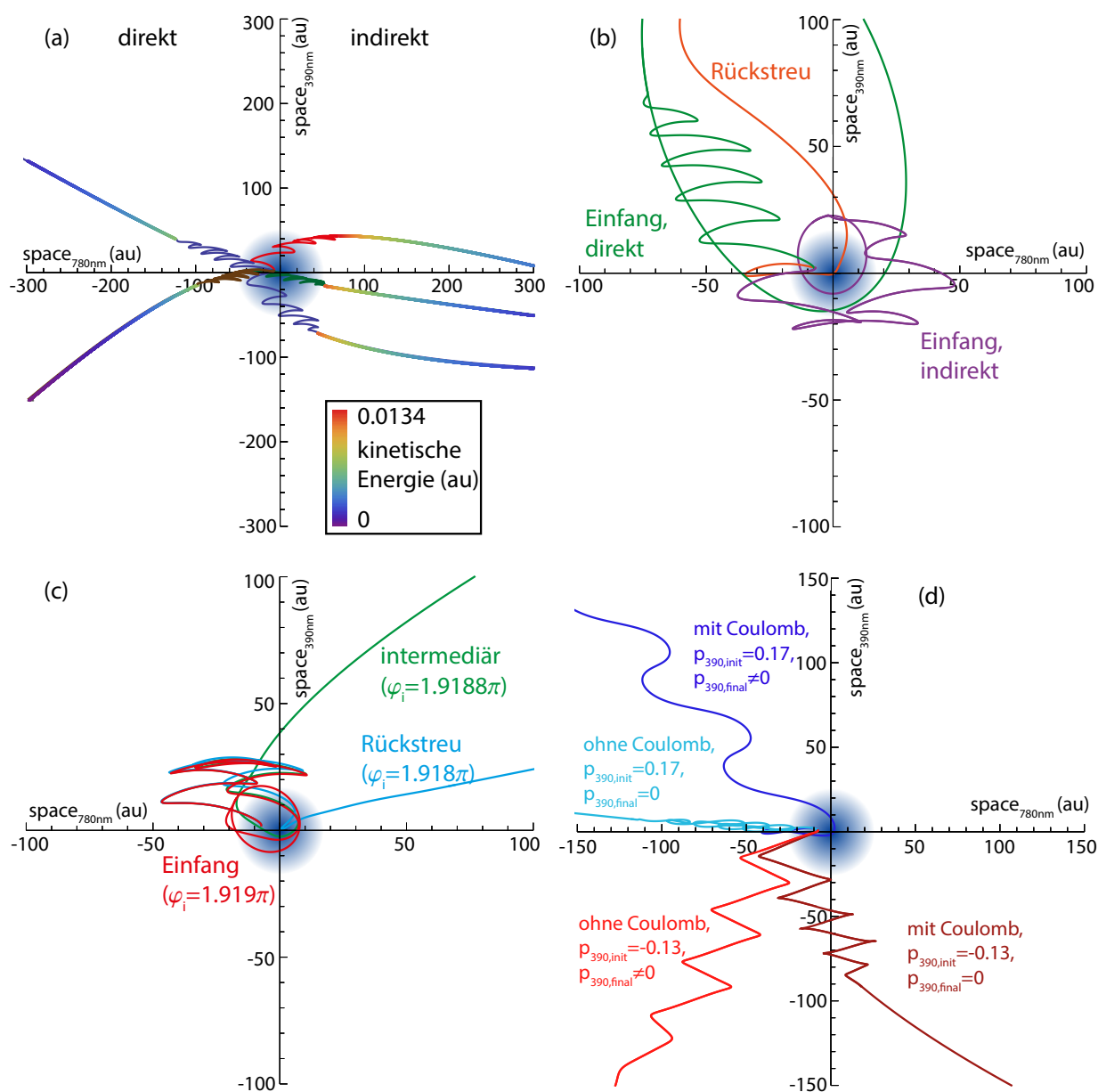
**Abbildung 8.5:** Die Anfangsbedingungen jener Trajektorien, die zu der spitzenartigen Struktur in den Elektronenimpulsverteilungen führen. In allen Histogrammen gilt das Fenster auf den Endimpuls  $|p_{390}| \leq 0,01$  au,  $|p_{780}| \leq 0,05$  au,  $|p_{\perp}| \leq 0,05$  au. (a) Die Phase zwischen den beiden Farben gegen den Anfangsimpuls in 390 nm Richtung. (b), (c), (d) Anfangsimpulsverteilungen bei den drei markierten Phasen  $\phi$  in der Polarisationssebene. (e), (g) Die Anfangsimpulsverteilungen für zwei verschiedene Phasen in Abhängigkeit der Ionisationsphase  $\varphi_i$ . (f) Schematische Darstellung der Ionisationsphasen.



Die resultierende Anfangsimpulsverteilung ähnelt nicht der bereits diskutierten Verteilung des Coulomb-freien Falls. Die erste Auffälligkeit ist die große Breite der Anfangsimpulsverteilung von ca. 0,6 au, die während der Propagation im kombinierten Laser- und Coulomb-Feld auf die schmale Endimpulsverteilung mit der Breite von 0,01 au verringert wird. Eine weitere Auffälligkeit ist, dass der Schwerpunkt der Verteilung eher dem negativen Vektorpotential folgt, und nicht wie vom Coulomb-freien Fall erwartet, entgegengesetzt zu diesem Verläuft. Dies ist ein Hinweis darauf, dass die Anfangsimpulse durch das Coulomb-Potential vorher überkompensiert werden.

Um solche Trajektorien, welche zu der spitzenartigen Struktur führen, besser einordnen zu können, wird in Abb. 8.5(b)-(d) nicht nur ihr Anfangsimpuls in Streakingrichtung betrachtet, sondern auch in der Richtung senkrecht zur Polarisationssebene  $p_{\perp,init}$ . Bei der Phase  $\phi = 2\pi$  (Abb. 8.5(d)) ist die Verteilung zentriert um  $\{p_{390,init}, p_{\perp,init}\} = \{0, 0\}$ , während sie sich bei  $\phi = 3/2\pi$  (Abb. 8.5(b)) auf  $p_{390,init} = 0,18$  au verschoben hat. Dies spiegelt den vom Coulomb-freien Fall bekannten Kompensationsmechanismus wider. Wird jedoch auch die farbkodierte Häufigkeit der Trajektorien in Betracht gezogen, ändert sich die Situation grundlegend.

Um diese Verteilungen nachvollziehen zu können, müssen die Tunnelphasen  $\varphi_i$ , also die Zeitpunkte, zu denen die Elektronen im Laserfeld starten, berücksichtigt werden. Dafür sind in Abb. 8.5(e) und (g) zu den Streakphasen  $\phi = 3/2\pi$  und  $\phi = 2\pi$  die 2D-Startimpulse gegen die Tunnelphase in einem 3D-Plot aufgetragen, wobei die Anfangsbedingungen hauptsächlich auf Kugelschalen liegen. Zu drei verschiedenen Tunnelphasen (Abb. 8.5(f)) sind Projektionen entlang  $\{p_{390,init}, p_{\perp,init}\}$  eingefügt, welche die Anfangsimpulsverteilungen zu den jeweiligen Tunnelphasen besser sichtbar machen. Diese 3D-Plots bilden bis auf den fast konstanten Tunnelabstand innerhalb dieser Zeitfenster, eine vollständige Karte der Startbedingungen der Coulomb-fokussierten Trajektorien. Mithilfe dieser Karte können drei Gruppen von Trajektorien bestimmt werden. Trajektorien, welche auf den Kugelschalen liegende Startbedingungen haben, entsprechen den aus der Literatur bekannten direkten und indirekten Trajektorien. Erstere werden etwa zwischen  $\varphi_{i,1}$  und  $\varphi_{i,2}$  (siehe Abb. 8.5(f)) geboren und verlassen die Umgebung des Mutterions, ohne sich ihm erneut zu nähern. Ein Beispiel für typische direkte Trajektorien sind in Abb. 8.6(a), links gezeigt. Die Trajektorien aus der anderen Hälfte der Kugelschale zwischen  $\varphi_{i,2}$  und  $\varphi_{i,3}$  entsprechen den indirekten Trajektorien, welche nach der Ionisation noch einmal in die Nähe des Potentials kommen. Typische Entwicklungen dieser indirekten Trajektorien sind in Abb. 8.6(a), rechts dargestellt. Elektronenverläufe mit den Startbedingungen, welche innerhalb der Kugelschalen liegen, werden im Folgenden als intermediäre Trajektorien bezeichnet. Sie können verschiedenste Verläufe haben und eine von ihnen ist exemplarisch in Abb. 8.6(c, grün) gezeichnet.



**Abbildung 8.6:** Trajektorien mit verschiedenen Startbedingungen in der Polarisationssebene. (a) Beispiele für die Gruppe der direkten und indirekten Trajektorien. (b) Trajektorien für Mechanismen Elektroneneinfang und Rückstreuung. (c) Die Gruppe der intermediären Pfade und was an ihren Grenzen zum Gelangen zu  $p_{390nm} = 0$  passiert. (d) Trajektorien, die den Überkompensationsmechanismus verdeutlichen.

Um zu einem Impuls in der Nähe von null zu gelangen, ist es für die direkten und indirekten Elektronentrajektorien ein schmaler Grat. Der äußere Radius der Kugelschale ist dadurch definiert, dass solche Elektronen nach der Ionisation zu schnell durch das Laserfeld vom Potential weg getrieben werden und so hohe Endimpulse erhalten können. Andererseits könnte es passieren, dass sie nicht genug Energie während der Propagation im

Laserfeld aufnehmen können und in einen hoch angeregten Rydbergzustand eingefangen werden (Abb. 8.6(b, lila und grün)). Zusätzlich können die indirekten Elektronen auch stark am verbleibenden Ion rückstreuen und so hohe Endimpulse erreichen. Die beiden Mechanismen des Elektroneneinfangs und der Rückstreuung geben den inneren Radius der Kugelschale vor.

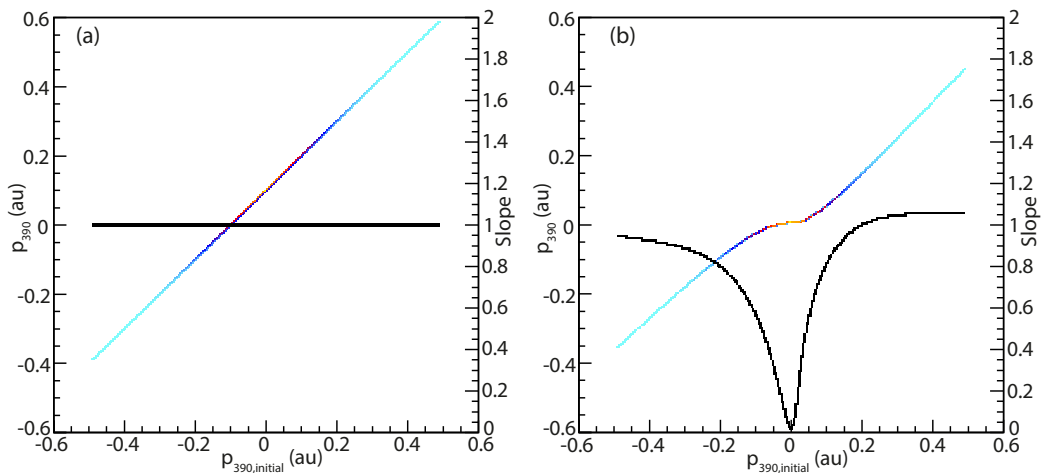
Die Anfangsbedingungen der intermediären Elektronentrajektorien bilden schmale Inseln innerhalb der Kugelschalen von Abb. 8.5(e,g). Sie haben zwar nie genügend Energie, um die Nähe des Mutterions so schnell wie die direkten oder indirekten Elektronen zu verlassen, können jedoch auf komplizierteren Bahnen dennoch Impuls null erreichen. Ein Beispiel für eine solche intermediäre Trajektorie mit den Anfangsbedingungen  $\{p_{\perp,init}; p_{390,init}; \varphi_i\} = \{0; 0.15; 1.9188\pi\}$  ist in Abb. 8.6(c,grün) zu sehen. Wird nur sehr wenig von dieser Bedingung abgewichen, kommt es zu vollkommen verschiedenen Ergebnissen. Die minimale Erhöhung der Phase zu  $\varphi_i = 1,919\pi$  führt zum Einfang des Elektrons (Abb. 8.6(c, rot)). Im Gegensatz dazu kommt es bei der Verringerung der Phase zu  $\varphi_i = 1,918\pi$  zur Streuung am Ion (Abb. 8.6(c, blau)). Dies führt dazu, dass dieses Elektron einen Endimpuls von etwa 1 au hat.

Da die relevanten Trajektorientypen nun identifiziert sind, kann im Folgenden ihr Beitrag abhängig von der Phase  $\phi$  betrachtet werden. Wie bereits beim Coulomb-freien Modell diskutiert, ist eine Verschiebung des Anfangsimpulses in Streakingfeldrichtung  $p_{390,init}$  genau entgegengesetzt zum negativen Vektorpotential des zweiten harmonischen Feldes zu erwarten. Entsprechend Abb. 8.5(b) wären es  $p_{390,init} = 0,17$  au für die Phase des Streakingfeldes von  $\phi = 3/2\pi$  und für  $\phi = 2\pi$  wären es  $p_{390,init} = 0$  au. Tatsächlich haben die Anfangsimpulsverteilungen für die Zeiten  $t_1$  und  $t_3$ , welche den direkten und indirekten Trajektorien entsprechen, ungefähr diese Werte. Bei Annäherung von beiden Seiten an die Grenzlinie zwischen direkten und indirekten Elektronen, was der Ionisationsphase  $\varphi_{i,2}$  entspricht, weichen die Anfangsimpulse der Coulomb-fokussierten Elektronen stark von den erwarteten ab. Bei der Phase  $\phi = 2\pi$  befinden sie sich auf einem Ring um null herum, auf welchem sie gleichmäßig verteilt sind. Im Gegensatz dazu befinden sie sich bei  $\phi = 3/2\pi$  auf einem Ring, bei dem der höchste Elektronenertrag etwa bei  $p_{390,init} = -0,13$  au liegt. Diese große Gruppe von Elektronen durchläuft einen vorher nicht erwarteten Überkompensationsmechanismus, denn das Vektorpotential des 390 nm Feldes hat bei dieser Phase einen Wert von  $p_{390,stretch} = -0,17$  au und zusätzlich haben die Coulomb-fokussierten Elektronen einen Startimpuls von  $p_{390,init} = -0,13$  au. Ohne den Einfluss des Coulomb-Potentials würden diese Elektronen nicht einen Endimpuls von etwa null haben, sondern einen vergleichsweise großen Endimpuls von etwa  $p_{390,final} = -0,27$  au.

Um diesen Überkompensationsmechanismus zu untersuchen, ist in Abb. 8.6(d) ein Set von Trajektorien dargestellt, welche alle bei der gleichen Ionisationsphase  $\varphi_{i,2}$  und Streakingphase  $\phi = 3/2\pi$  einmal mit und einmal ohne Coulomb-Potential starten. Ohne die Einbeziehung des Coulomb-Potentials, benötigen die Elektronen in 390 nm Richtung einen Startimpuls von  $p_{390,init} = +0,17$  au, um den Impuls durch das Streakingfeld zu kompensieren (8.6(d, hellblau)). Sobald jedoch bei diesen Startbedingungen das Coulomb-Potential eingeschaltet wird, hat das Elektron weder in 390 nm noch in 780 nm Richtung genügend Geschwindigkeit, um die Nähe des ionischen Potentials zu verlassen und wird so

zu hohen Impulsen gestreut 8.6(d, dunkelblau). Sobald der passende Wert für das Erreichen des Impulses null für das Elektron unter dem Einfluss des ionischen Potentials von  $p_{390,init} = -0,13$  au gewählt wird, ergibt sich der dunkelrote Pfad in Abb. 8.6(d). Abschließend führen dieselben Startbedingungen bei Ausschalten des Coulomb Potentials zu einem Elektron, welches, wie im vorigen Abschnitt beschrieben, einen betragsmäßig sehr hohen Endimpuls hat 8.6(d, hellrot).

Bis zu dieser Stelle wurden die Anfangsbedingungen der Trajektorien identifiziert, welche die spitzenartige Struktur bei  $p_{390nm} = 0$  bilden. Die Anfangsimpulsverteilung ist eine Gaußfunktion, die durch ihre Abbildungsfunktion (Abb. 8.7) auf die Endimpulsverteilung projiziert wird. Die spitzenartige Struktur entsteht an einer Stelle, an der die Ableitung der Abbildungsfunktion null ergibt. In Abb. 8.7 wird dies an einem Set von Trajektorien gezeigt, welche bei der Phase  $\varphi_i = 1,87\pi$  ionisiert werden und die Phase zwischen den beiden Farben  $\phi = 1,95\pi$  beträgt. Sie starten mit einer gaußförmigen Anfangsimpulsverteilung in 390 nm Richtung und einem festen Startimpuls in Laserpropagationsrichtung  $p_{\perp,init} = 0,06$  au. In Abb. 8.7(a) ist der Anfangs- gegen den Endimpuls in 390 nm Richtung durch eine farbige Diagonale dargestellt. Durch das negative Vektorpotential bei dieser eingestellten Phase zwischen den beiden Farben, wird die Anfangsimpulsverteilung erwartungsgemäß zu höheren Impulsen verschoben. Da alle Elektronenimpulse für den festen Ionisationszeitpunkt um den gleichen Betrag verschoben werden, ergibt die Steigung der farbigen Linie eins. Die Steigungen entsprechen den schwarzen Kurven in den Histogrammen und deren Skala ist jeweils auf der rechten Seite.



**Abbildung 8.7:** Die farbigen Linien stellen die Abbildungsfunktion dar, die den Anfangs- auf den Endimpuls projiziert. Die schwarzen Kurven entsprechen den Steigungen der farbigen Linien. In (a) ist der Fall ohne Coulomb-Potential gezeigt und in (b) wurde das ionische Potential berücksichtigt.

Wird das ionische Potential für das gleiche Set von Trajektorien in Betracht gezogen, ergibt sich der in Abb. 8.7(b) gezeigte Zusammenhang zwischen Start- und Endimpuls. Die entsprechende farbige Kurve ist sehr flach um  $p_{390nm} = 0$  herum, was zu einer Steigung von null (schwarze Kurve) in diesem Bereich führt. In diesem Fall führen alle Startimpulse

mit  $|p_{390nm,init}| \leq 0,05$  auf fast dem gleichen Endimpuls bei  $p_{390nm} = 0$ . Dieser Fokussierungseffekt beeinflusst die Trajektorien aller Startphasen und führt, verglichen mit dem Coulomb-freien Fall, zu einer Erhöhung der Elektronenimpulse bei null, d.h. der spitzenartigen Struktur. Es ist hierbei wichtig anzumerken, dass die Phase zwischen den beiden Farben für Abb. 8.7 zufällig gewählt wurde und ähnliche Abbildungen für alle anderen Phasen  $\phi$  gemacht werden könnten.

## 8.4 Zusammenfassung

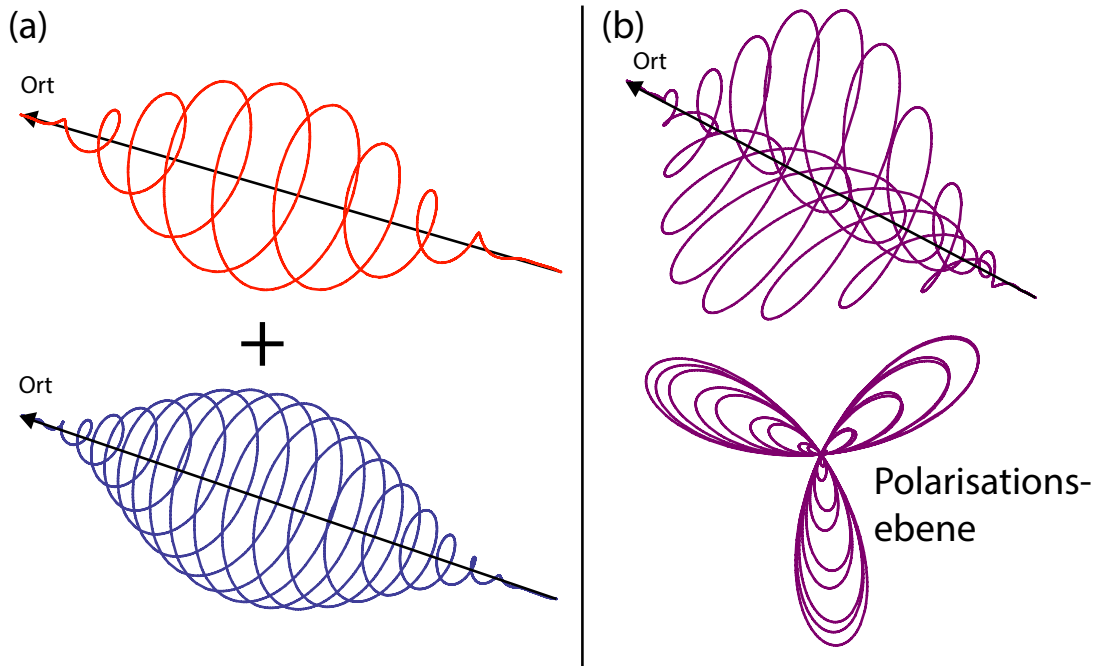
In diesem Kapitel wurde der Einfluss des Coulomb-Potentials auf Elektronen nach ihrer Starkfeldionisation im orthogonal polarisierten Zwei-Farben-Feld untersucht. Im Speziellen wurde festgestellt, dass die spitzenartige Struktur in der Elektronenimpulsverteilung, welche auf die Coulomb-Fokussierung zurückzuführen ist, kaum von der Phase zwischen den beiden Farben abhängt und scheinbar nicht vom 390 nm Feld beeinflusst wird. Mithilfe einer 3D-Simulation unter Berücksichtigung des Coulomb-Potentials konnten die Anfangsimpulsverteilung für solche Elektronen, welche zur spitzenartigen Struktur bei  $p_{390nm} = 0$  beitragen, identifiziert werden. Diese Elektronengruppe wird durchaus stark vom zweiten harmonischen Feld beeinflusst. Jedoch gibt es bei jeder Phase ein Set von Anfangsimpulsen, welche während der Propagation im kombinierten Laser- und Coulomb-Feld zum Endimpuls bei  $p_{390nm} = 0$  führen. Abschließend wurde unter Verwendung einer Abbildungsfunktion, die den Zusammenhang von Start- und Endimpuls wiedergibt, die Dominanz der spitzenartigen Struktur im Elektronenimpulsspektrum durch den Fokussierungseffekt erklärt.

# Kapitel 9

## Ionisation mit Counter-Rotating Two Color Laserfeldern

Für die Kombination zweier gegenläufig zirkular polarisierter Pulse (Abb. 9.1(a)) ergibt sich beim Intensitätsverhältnis 1:1 ein elektrischer Feldverlauf, der einem dreiblättrigen Propeller ähnelt (Abb. 9.1(b)). Das Ändern der Phase zwischen den beiden Feldern des sog. „counter-rotating circularly-polarized two-color laser fields“ (CRTC) bewirkt eine Drehung des Propellers. Der Verlauf eines CRTC-Feldes muss jedoch nicht unbedingt einem Propeller ähneln, sondern kann sich bei Einstellen der vielen Freiheitsgrade stark ändern. Die insgesamt sieben Freiheitsgrade bestehen aus den absoluten Intensitäten, den Elliptizitäten, der Phase zwischen den Pulsen, dem Winkel zwischen den beiden Hauptachsen der Polarisationsellipsen und dem Drehsinn zueinander. Durch kontrollierte Steuerung dieser Parameter ist die Untersuchung einer Vielzahl an verschiedenen physikalischen Effekten denkbar. Eine Auswahl davon soll u.a. im folgenden Abschnitt präsentiert werden.

Erste Experimente mit dem CRTC-Feldverlauf wurden bereits 1995 durchgeführt, welche die Erzeugung zirkular polarisierter höherer Harmonischer zum Ziel hatten [83]. In weiteren theoretischen [84, 85, 86, 87] und experimentellen [88, 89] Arbeiten wurde die Erzeugung der zirkular polarisierter höherer Harmonischer tiefer gehend beschrieben. Elektronenemissionen unter Verwendung von CRTC-Feldern wurden zuerst theoretisch diskutiert [90, 91, 92] und erst kürzlich (2015) in [93] gemessen, wo die Einfachionisation von Argon unter Verwendung der „velocity-map-imaging“ (VMI)-Methode untersucht wurde. Die Impulse in der Polarisationssebene können jedoch bei der VMI-Messmethode nicht direkt gemessen werden, sondern müssen tomographisch aus einer 2D-Impulsverteilung rekonstruiert werden. Im Weiteren werden mit der COLTRIMS-Methode gemessene 3D-Elektronenimpulsverteilungen dieses Feldes mit kalibrierten Intensitäten vorgestellt und anschließend ein Ausblick auf zukünftige Möglichkeiten der Anwendung gegeben.



**Abbildung 9.1:** Zusammensetzung des CRTC-Feldes aus entgegengesetzt rotierenden, zirkular polarisierten Zwei-Farben-Feldern gleicher Intensität. In (a) sind schematisch die einzelnen Komponenten des elektrischen Feldes 780 nm (oben) und 390 nm (unten) dargestellt. In (b) ist der Feldverlauf für die überlagerten Zwei-Farben-Felder dargestellt. Die Propellerform des Pulses in der Polarisationssebene ist in (b, unten) erkennbar.

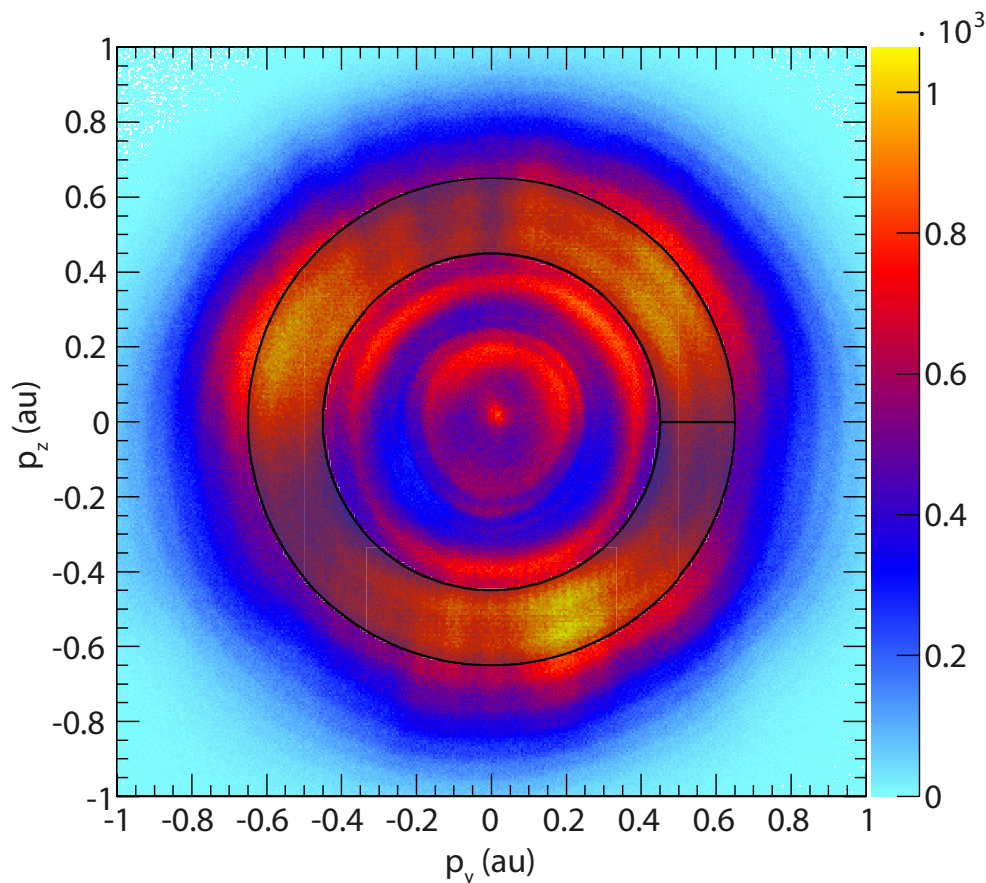
Der elektrische Feldverlauf ist durch die Summe zweier entgegengesetzt zirkular polarisierter Felder gegeben

$$\mathbf{E} = E_{780} \begin{pmatrix} \sin(\omega t + \phi) \\ \cos(\omega t + \phi) \end{pmatrix} + E_{390} \begin{pmatrix} \cos(2\omega t + \phi) \\ \sin(2\omega t + \phi) \end{pmatrix} \quad (9.1)$$

## 9.1 Phasenkorrektur

Genau wie beim OTC-Aufbau kommt es vor allem durch Temperatur- und Luftfeuchtigkeitsschwankungen zu langsamen ( $\approx 45^\circ/\text{Stunde}$ ) Drifts der Phase zwischen den beiden Farben. Für die in dieser Arbeit gemessenen Feldkonfigurationen ändert sich die Form des elektrischen Feldes der kombinierten zwei Farben beim Ändern der Phase nicht, sondern der gesamte Propeller dreht sich nur in der Polarisationssebene. Die so auftretende Drehung der Elektronenimpulsverteilung in Abhängigkeit des Phasendriffs kann in der Offlineanalyse leicht korrigiert werden. Dazu wird der Winkel  $\phi$ , der in der Polarisationssebene liegt, gegen den „Eventcounter“, welcher die Nummer des gemessenen Ereignisses angibt, aufgetragen (Abb. 9.3(a)). Die drei senkrechten Linien entsprechen den drei Inseln, die sich aus dem CRTC-Feld ergeben. In dieser Messung der Einfachionisation von Argon beträgt das Intensitätsverhältnis von 780 nm zu 390 nm 9:1 und die Gesamtmesszeit etwa 14,5 Stun-

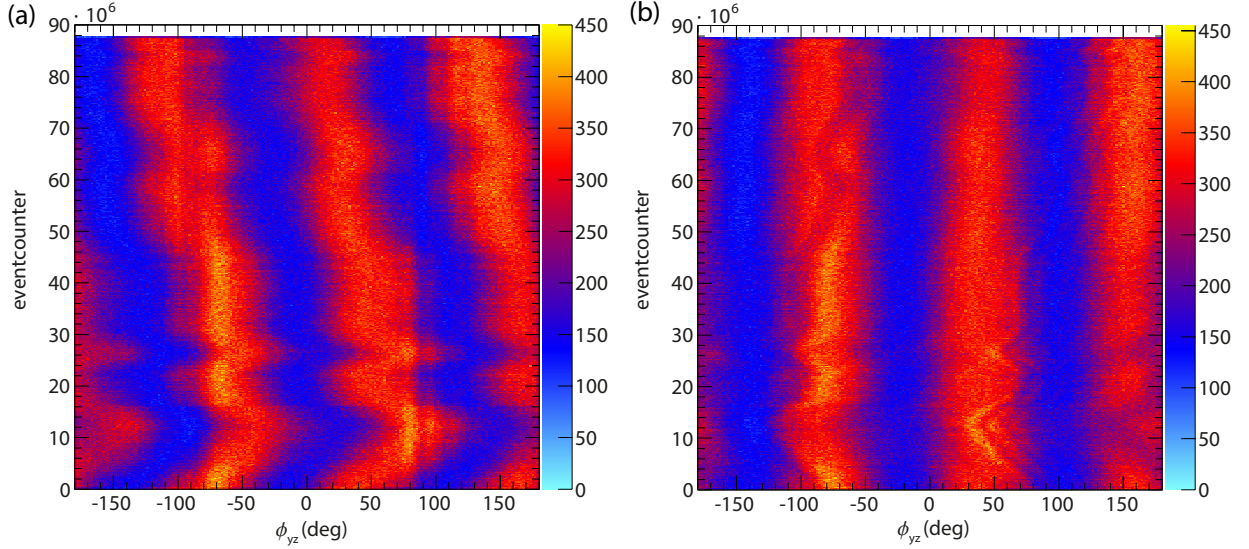
den. Der Kontrast der Linien zum Hintergrund wird mit der Bedingung im Impulsraum  $0,45 \text{ au} < \sqrt{p_z^2 + p_y^2} < 0,65 \text{ au}$ , welche als grünlicher Ring in Abb. 9.2 erscheint, vergrößert.



**Abbildung 9.2:** Elektronenimpulsverteilung der Einfachionisation von Argon durch ein CRTC-Feld mit dem Intensitätsverhältnis 780 nm zu 390 nm 9:1. Der leicht transparente, grünliche Ring stellt die Bedingung für die in Abb. 9.3 gezeigten Plots dar. Die Phase ist in diesem Spektrum noch nicht korrigiert. Die Impulsverteilung ist über die Impulskomponente senkrecht zu beiden Feldrichtungen  $p_x$  integriert.

Durch einen Algorithmus, der das Maximum entlang einer der drei Linien durch Mittelung über 10000 Ereignisse bestimmt, wird der zur Korrektur notwendige Drehwinkel gefunden. Nach Anwendung der Drehung treten deutlich weniger Phasenvariationen auf (Abb. 9.3(b)). Das phasenkorrigierte Impulsspektrum der CRTC-Messung ist in Abschnitt 9.3 zu finden.





**Abbildung 9.3:** Der Winkel  $\phi_{yz} = \arctan(p_z/p_y) \cdot (180/\pi)$  in der Polarisationssebene ist gegen den Eventcounter aufgetragen. (a) Der Phasendrift über die gesamte Messzeit (ca.14,5 Stunden). Ein Algorithmus gibt die Position des Maximums entlang einer Linie aus. Diese Position entspricht dem Winkel, um den das Impulsspektrum gedreht werden muss, um den Phasendrift auszugleichen. Der korrigierte Phasenverlauf ist in (b) dargestellt. Es gilt die Bedingung im Impulsraum  $0,45 \text{ au} < \sqrt{p_z^2 + p_y^2} < 0,65 \text{ au}$  und die Daten sind über die Impulskomponente senkrecht zu beiden Feldrichtungen  $p_x$  integriert.

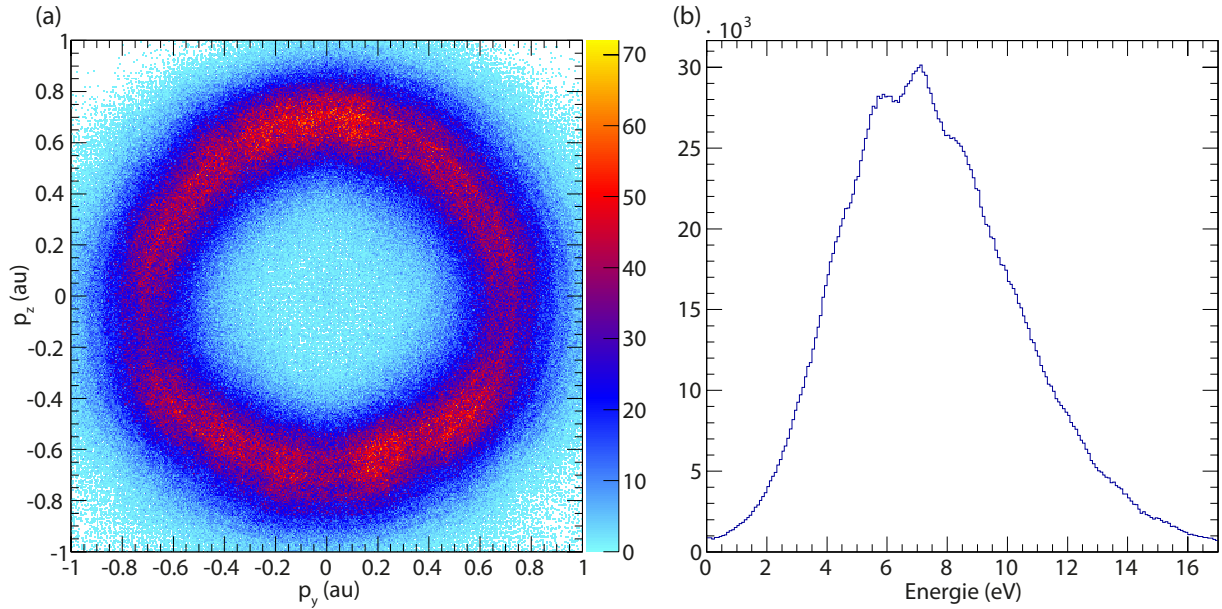
Die zusätzlichen senkrecht verlaufenden Strukturen in Abb. 9.3(a) stellen Unterschiede in der Detektoreffizienz dar. Das in diesem Fall eher zufällige „Wischen“ des Impulsspektrums über die Effizienzlöcher und das nachträgliche Korrigieren bewirken eine Mittelung der Effizienz über den ganzen Detektor. Für zukünftige Messungen ist es sinnvoll, diesen positiven Effekt der Effizienzmittelung durch das kontrollierte und kontinuierliche Fahren der Phase herbeizuführen.

## 9.2 Intensitätsbestimmung

Die zunächst unbekanntes Intensitäten der beiden Farben wurden so eingestellt, dass sich im Photoelektronenimpulsspektrum eine Verteilung mit drei gut voneinander trennbaren Inseln (Abb. 9.8 in Abschnitt 9.3) ergab und diese in etwa der Form des Vektorpotentials folgte. So war ein Bereich für die für weitere Messungen zu verwendenden Intensitäten festgelegt. Um die Farben einzeln kalibrieren zu können, wurde die jeweils andere Farbe in dem nicht-kollinearen Aufbau blockiert.

Abbildung 9.4(a) zeigt das Elektronenimpulsspektrum für den Fall, in dem nur der 780 nm Puls in die Messapparatur weitergeleitet wurde. Das zirkular polarisierte Licht führt zu einer ringförmigen Verteilung, deren Breite durch die senkrechte Startimpulsverteilung bestimmt ist. Ebenfalls sind in dem Spektrum deutlich ATI-Ringe zu erkennen, welche nach

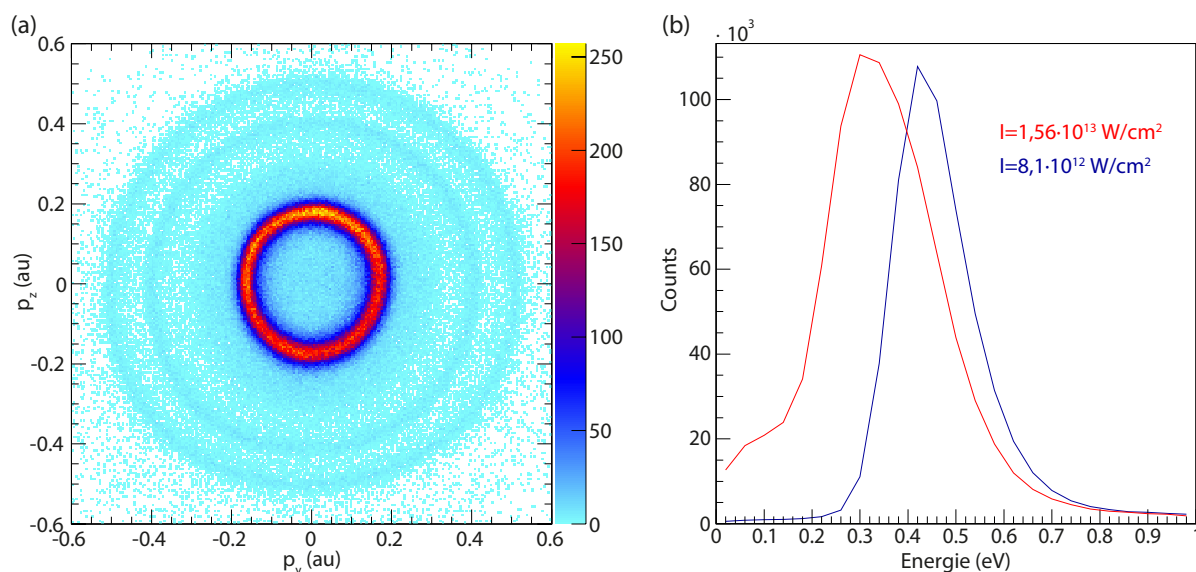
unserem Wissen noch nie bei einer Wellenlänge von 780 nm aufgelöst wurden. Die maximale Energie der direkten (=nicht rückstreuenden) Elektronen beträgt, wie in Gleichung 2.7 gezeigt,  $E_{\text{direkt}} = U_p$ .



**Abbildung 9.4:** (a) Elektronenimpulsverteilung der Einfachionisation von Argon mit zirkular polarisierten 780 nm Laserpulsen in Polarisationsenebene. Auf der zirkularen Impulsverteilung sind ATI-Ringe deutlich sichtbar. Die Impulsverteilung ist über die Impulskomponente senkrecht zu beiden Feldrichtungen  $p_x$  integriert. Aus einem Fit der entsprechenden Energieverteilung (b) kann  $U_p$  und daraus die Intensität des Laserfeldes bestimmt werden.

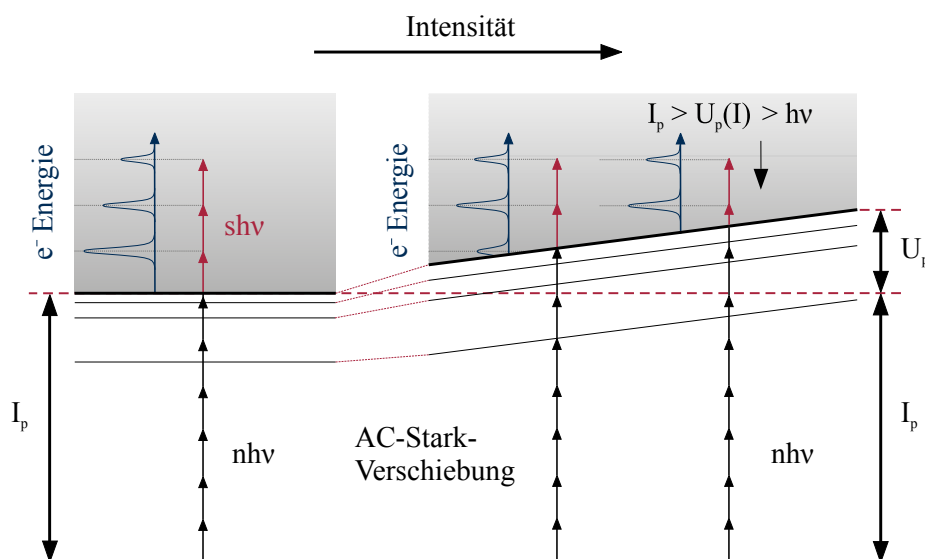
Mittels eines Gaußfits des zur Impulsverteilung gehörigen Energiespektrums (Abb. 9.4(b)) kann die Energie der direkten Elektronen bestimmt werden zu  $E_{\text{direkt}}=U_p=6,9$  eV. Daraus ergibt sich aus dem Zusammenhang aus Gleichung 2.5 zwischen  $U_p$  und  $I$  die Intensität  $I=1,2 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.

Die Bestimmung der Intensität des 390 nm Pulses gestaltete sich aufwändiger, da bei der eingestellten Intensität die Ionisationswahrscheinlichkeit von Argon ( $I_p=15,76$  eV) zu niedrig war, um genügend Ereignisse zu detektieren. Deshalb wurde Xenon als Target verwendet, da es eine niedrigere Ionisationsschwelle von  $I_p=12,13$  eV hat. Die Impulsverteilung der Elektronen von einfach ionisiertem Xenon ist in Abb. 9.5(a) dargestellt.



**Abbildung 9.5:** (a) Die Impulsverteilung der Photoelektronen in der Polarisationssebene der Einfachionisation von Xenon mit einem zirkular polarisierten 390 nm Laserfeld bei einer Intensität von  $I=1,09 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . Die Impulsverteilung ist über die Impulskomponente senkrecht zu beiden Feldrichtungen  $p_x$  integriert. (b) Energieverteilung im Bereich von 0 bis 1 eV der zu (a) gehörigen Photoelektronen für die niedrigste (blau) und höchste (rot) gemessene Intensität. Die Starkverschiebung dieser ATI-Peaks beträgt etwa 0,1 eV.

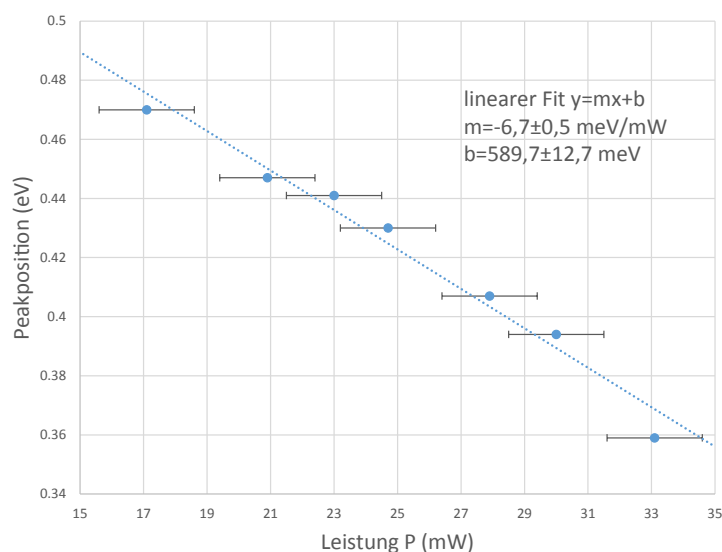
An den ATI-Ringen mit großen Abständen wird deutlich, dass der Ionisationsprozess besser durch die Multiphotonenionisation beschrieben wird. In diesem Fall entspricht die maximale Energie der direkten Elektronen nicht mehr dem ponderomotorischen Potential, weshalb es auf eine andere Art und Weise bestimmt werden muss. Dafür kann der Effekt der AC-Starkverschiebung der atomaren Energielevel [94] ausgenutzt werden. In dem Wechselfeld des Lasers verschieben sich die höheren Energielevel des Atoms, während der Grundzustand weniger stark beeinflusst wird (Abb. 9.6, [95]).



**Abbildung 9.6:** Die Abbildung, entnommen aus [95], zeigt die Starkverschiebung der atomaren Energielevel zu höheren Energien bei steigender Intensität. Die Verschiebung des Kontinuums entspricht der ponderomotorischen Energie  $U_p$ . Dass die Verschiebung der ATI-Peaks auch durch Interferenzen im Tunnelbild erklärbar ist, wurde bereits in Abschnitt 7.1.1 gezeigt.

An dieser Abbildung wird ersichtlich, dass sich das Kontinuum um  $U_p$  zu höheren Energien bei steigender Laserintensität verschiebt. Deshalb wandern die ATI-Peaks der Multiphotonenionisation bei wachsender Laserintensität zu kleineren Energien.  $U_p$  ist linear von der eingestellten Leistung  $P$  abhängig und folgt der Gleichung  $U_p = mP + b$ . Da  $U_p$  bei  $P = 0$  auch null sein muss, ist  $b = 0$  und es ist nur noch die Steigung  $m$  der Geraden zu finden.

Dazu wurde das Elektronenimpulsspektrum der Einfachionisation von Xenon für insgesamt sieben verschiedene Leistungen des 390 nm Pulses gemessen und jeweils die Position des prominentesten Peaks im Energiespektrum bestimmt. In Abb. 9.5(b) ist das Energiespektrum der gemessenen Elektronen für die niedrigste (blau) und höchste (rot) Leistung zu sehen. Die Werte der Peakpositionen für alle Leistungen und der lineare Fit zur Bestimmung der Steigung ist in Abb. 9.7 dargestellt.



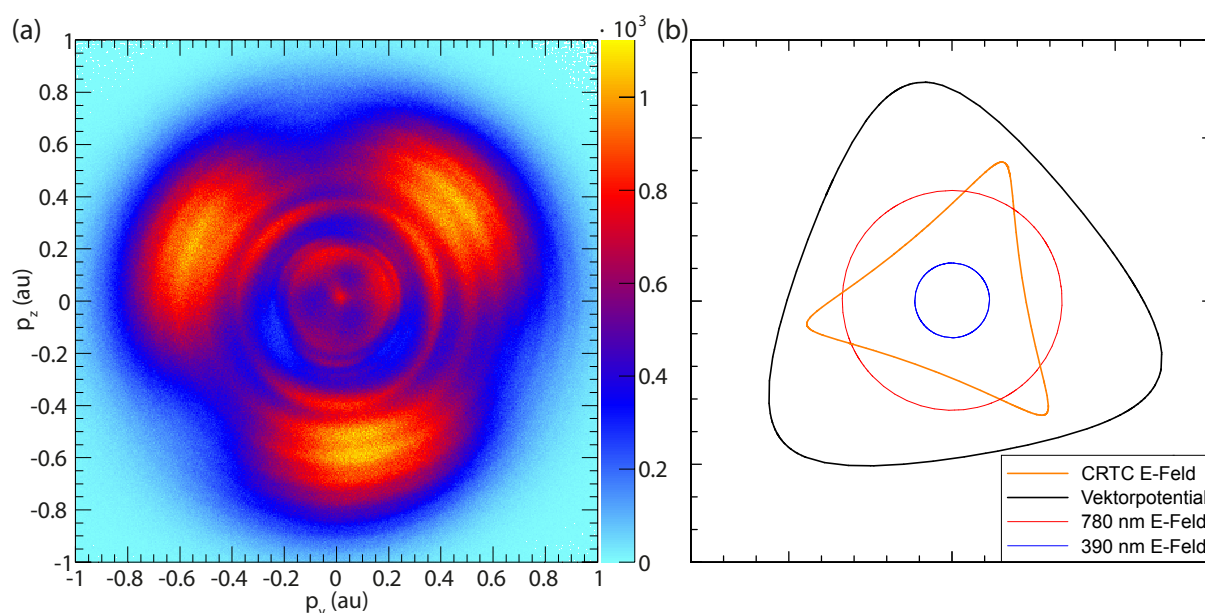
**Abbildung 9.7:** Die mit einem Gaußfit bestimmten Positionen des stärksten Peaks im Energiespektrum. Wegen permanter Schwankungen der Leistung, war sie nicht besser als auf  $\pm 1,5$  mW genau zu bestimmen.

Der lineare Fit ergibt eine Steigung von  $6,7$  meV/mW. Da die Verschiebung des Peaks gerade  $-U_p$  entspricht, gilt  $U_p = 6,7(\text{meV/mW})P$ . Die Verknüpfung von  $U_p$  mit der Intensität liefert wieder Gleichung 2.5. Der gemessene Intensitätsbereich reicht von  $8,1 \cdot 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> bis  $1,56 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>.

### 9.3 CRTC Elektronenimpulsverteilungen

Alle folgenden Impulsverteilungen wurden mit dem in Abschnitt 3.5 beschriebenen Aufbau gemessen. Speziell wird in 9.1 auch auf die Korrektur der Phase und in 9.2 auf die Kalibrierung der Intensität eingegangen, welche in Zusammenarbeit mit S. Heck [96] durchgeführt wurde. Vor Überlagern des 390 nm und des 780 nm Feldes müssen ihre Polarisierungen mithilfe der Kombination aus  $\lambda/2$ - und  $\lambda/4$ -Wellenplättchen möglichst zirkular eingestellt werden. Die Impulsverteilungen mit den letztendlich erreichten Zirkularitäten beider Farben sind in Abb. 9.4 (780 nm) und Abb. 9.5(a) dargestellt.

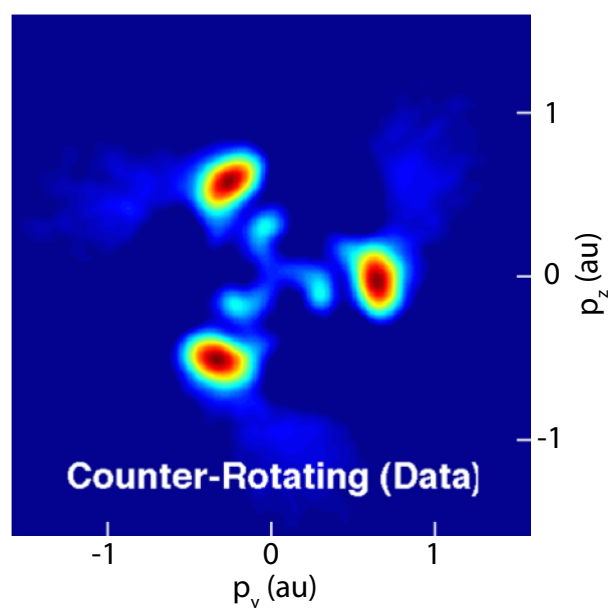
Bei Überlagerung der beiden zirkular polarisierten Felder und Justieren der Intensitäten auf das Verhältnis  $I_{780\text{nm}}/I_{390\text{nm}}=8:1$  ( $I_{780\text{nm}}=1,28 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>,  $I_{390\text{nm}}=1,56 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>) ergibt sich nach Einfachionisation von Argon die in Abb. 9.8(a) dargestellte Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene.



**Abbildung 9.8:** (a) Elektronenimpulsverteilung der Einfachionisation von Argon mit dem CRTC-Laserpuls bei dem Intensitätsverhältnis  $I_{780nm}/I_{390nm}=8:1$  ( $I_{780nm}=1,28 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>,  $I_{390nm}=1,56 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>). Die Impulsverteilung ist über die Impulskomponente senkrecht zu beiden Feldrichtungen  $p_x$  integriert. (b) Der Verlauf des elektrischen CRTC-Feldes und des zugehörigen Vektorpotentials für die verwendeten Intensitäten und bei der entsprechenden Phase zwischen den Pulsen.

Diese Verteilung ähnelt jener aus einer indirekteren VMI-Messung aus der Literatur [93] (Abb. 9.9). Dort wird jedoch bei gleichem Target und gleichen Wellenlängen ein Intensitätsverhältnis von 1:1 angegeben.

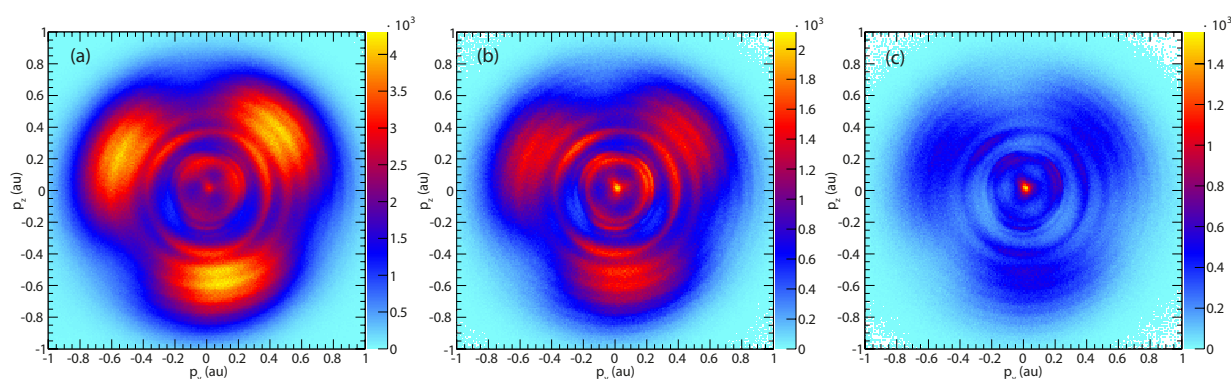
Beide Messungen zeigen drei große Inseln, welche von Elektronentrajektorien stammen, die nur schwach mit dem Coulomb-Potential des verbleibenden Mutterions wechselwirken. Sie folgen vornehmlich dem zum Ionisationszeitpunkt vorherrschenden Vektorpotential (Abb. 9.8(b)) und werden durch das Laserfeld zu diesen Endimpulsen getrieben. Auch die spiralförmige Struktur ist in beiden Messungen vorhanden. Sie entsteht durch die Wechselwirkung der getunnelten Elektronen mit dem verbleibenden Coulomb-Potential und wird an späterer Stelle dieses Kapitels genauer untersucht.



**Abbildung 9.9:** Mit der VMI-Methode gemessene Elektronenimpulsverteilung für die Ionisation von Argon mit einem CRTC-Feld mit dem Intensitätsverhältnis 1:1. Abbildung entnommen aus [93].

### 9.3.1 Zentraler Peak

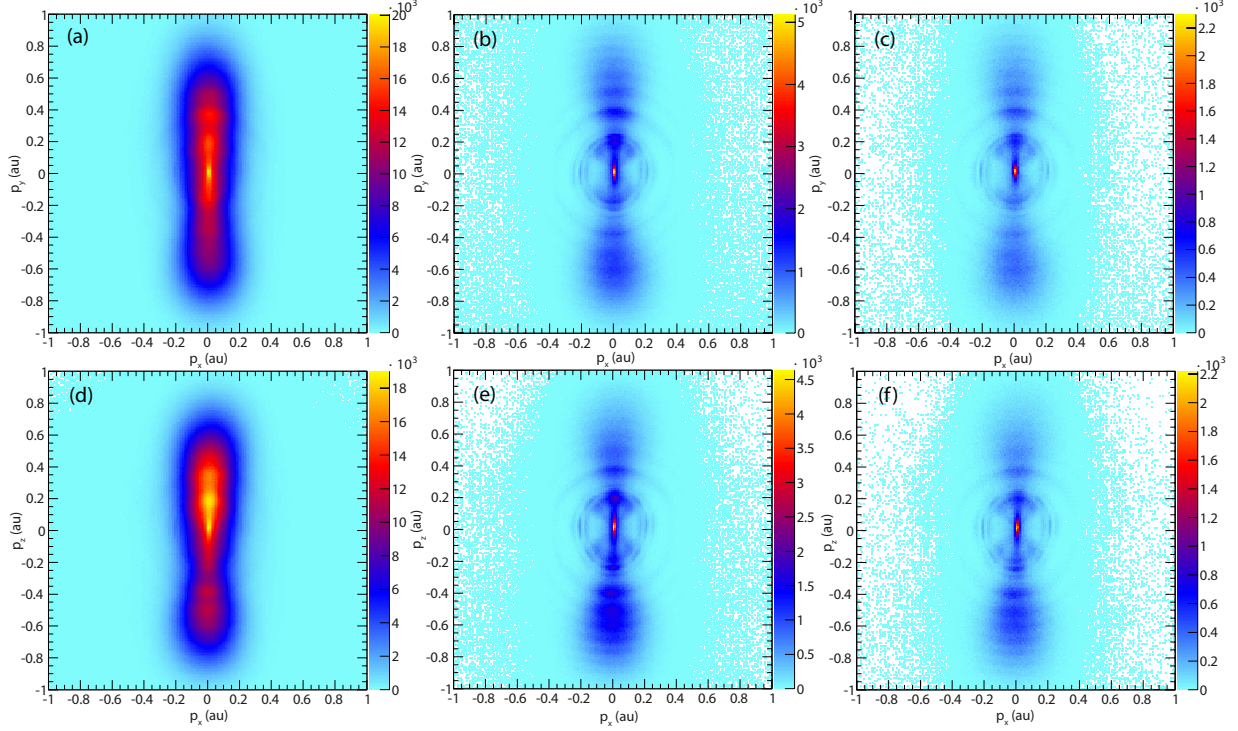
Werden Bedingungen im Impuls entlang der Propagationsrichtung  $p_x$  gesetzt, sind die drei Inseln im Vergleich zur Mitte viel schwächer ausgeprägt (Abb. 9.10).



**Abbildung 9.10:** Elektronenimpulsverteilungen in der Polarisationssebene ohne Bedingung auf den Impuls in Propagationsrichtung (a), mit der Bedingung  $|p_x| \leq 0.06$  au (b) und  $|p_x| \leq 0.02$  au (c).

In Abb. 9.10(a) ist noch keine Bedingung gesetzt, während für Abb. 9.10(b)  $|p_x| \leq 0.06$  au und für Abb. 9.10(c)  $|p_x| \leq 0.02$  au gelten. Der prominente Peak in der Mitte für schmale Impulsschnitte um null herum tritt auch bei Betrachtung der Impulsverteilung in  $p_x$ - $p_y$ -

und in  $p_x$ - $p_z$ -Ebene auf, sobald eine schmale Bedingung in der jeweils senkrechten Richtung gesetzt wird (Abb. 9.11).



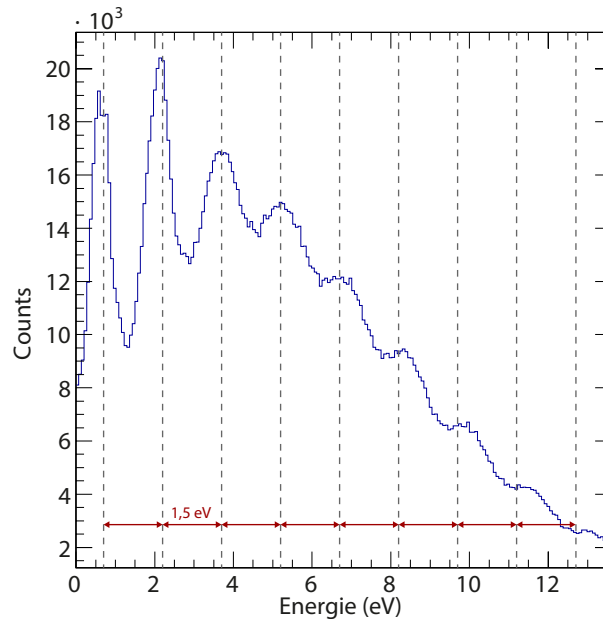
**Abbildung 9.11:** Projektion in  $p_x$ - $p_y$ -Ebene ohne Bedingung (a), mit  $|p_z| \leq 0.06$  au (b), mit  $|p_z| \leq 0.02$  au (c) und Projektion in  $p_x$ - $p_z$  ohne Bedingung (d), mit  $|p_y| \leq 0.06$  au (e), mit  $|p_y| \leq 0.02$  au (f).

Eine Vermutung ist, dass der Peak in der Mitte der Impulsverteilungen durch hoch angeregte Zustände erzeugt wird (Kapitel 6), die dann im elektrischen Feld des Spektrometers ionisiert werden und deshalb einen Impuls nahe null haben. Diese Überlegung wird dadurch gestützt, dass der Peak relativ zu Impuls null (Bestimmung aus dem Zentrum der ATI-Ringe) im Impuls in Flugzeitrichtung um etwa 0,01 au verschoben ist. Eine genaue Bestimmung des Impulses null, ähnlich wie in Kapitel 6.2, wurde an dieser Stelle jedoch nicht durchgeführt.

### 9.3.2 Interferenzen

In den Elektronenimpulsverteilungen konnten zwei Interferenzeffekte nachgewiesen werden. Einen der Effekte stellen die ATI-Ringe dar, welche einen Abstand von 1,5 eV (Abb. 9.12) haben und somit einem Vielfachen der Photonenenergie von 780 nm (1,5 eV) und auch Einem von 390 nm (3 eV) entsprechen.



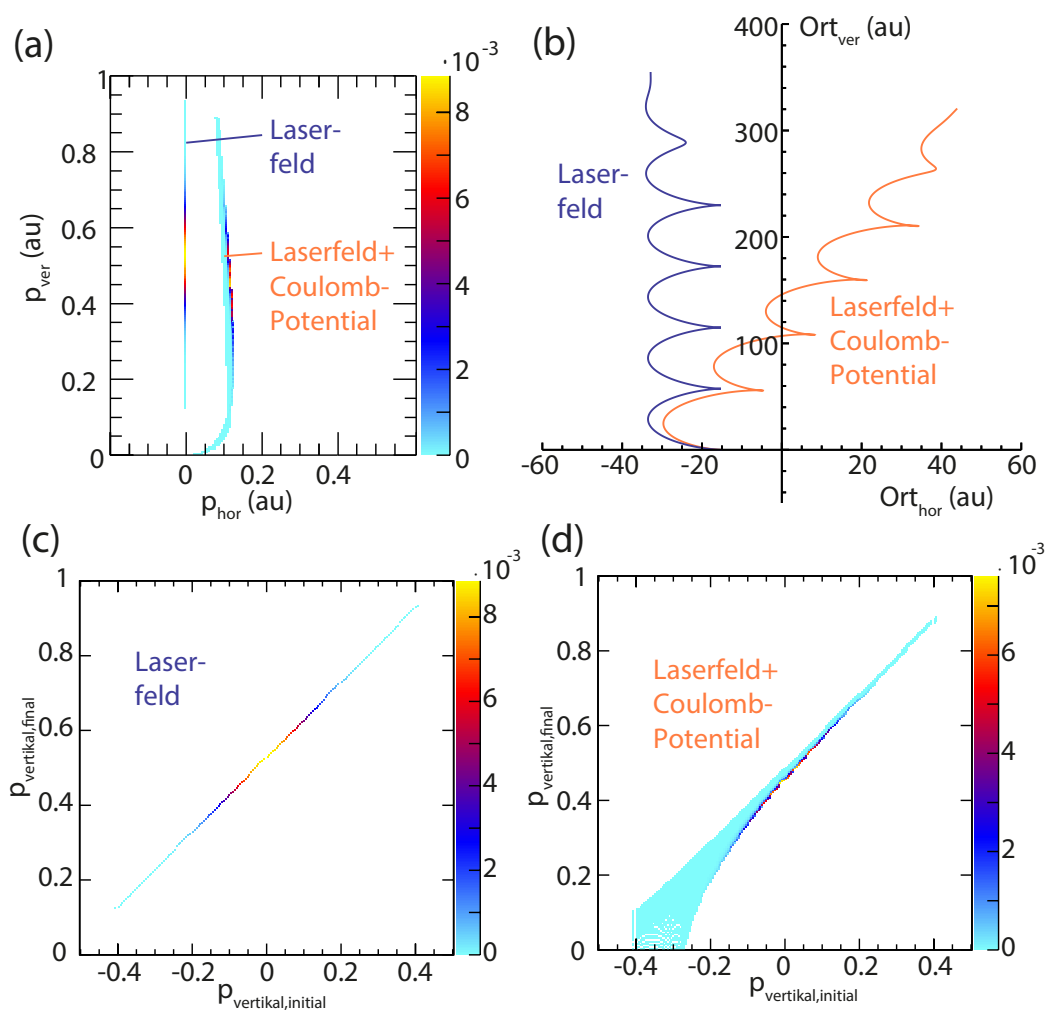


**Abbildung 9.12:** Die Energieverteilung der Photoelektronen der CRTC-Messung mit dem Intensitätsverhältnis  $I_{780nm}/I_{390nm}=8:1$ . Um den Kontrast der Peaks zum Hintergrund zu erhöhen, wurde ein Winkelausschnitt in der Polarisationssebene  $\phi = \pm 7,5^\circ$  gewählt. Entsprechend der Photonenenergie des 780 nm-Anteils im Zwei-Farben-Puls haben die Peaks einen Abstand von 1,5 eV.

Ein weiterer Effekt, der vermutlich seine Ursache in Interferenzeffekten hat, ist die ventilatorförmige Struktur von der Mitte ausgehend, welche in Abb. 9.11 (b), (c), (e), (f) zu sehen ist. Es könnte sich um eine Art der holographischen Interferenzen handeln (Spider-Legs, Kapitel 7.1). Dies wurde allerdings noch nicht durch Simulationen oder weitere Experimente bestätigt.

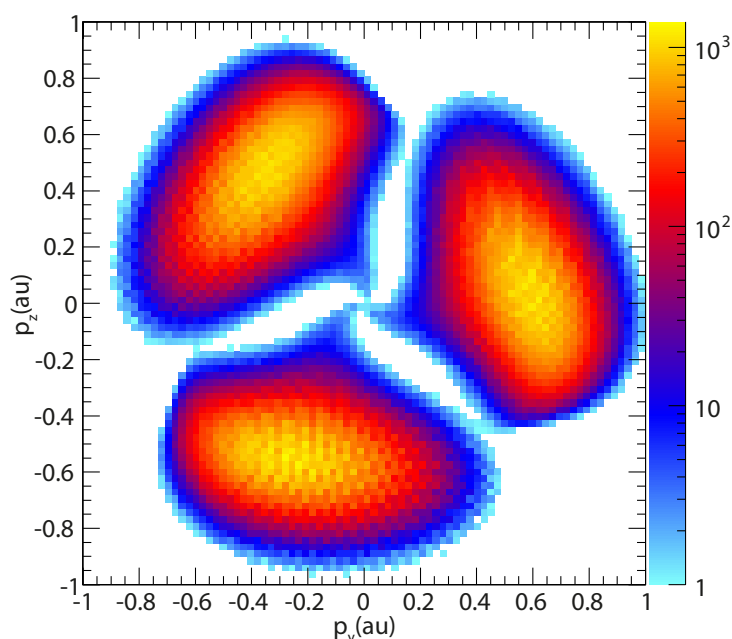
### 9.3.3 Coulomb-Effekt: Spirale

Ein weiteres Merkmal der gemessenen Impulsverteilung ist die spiralförmige Struktur, welche ihre Ursache in der Beeinflussung der Elektronentrajektorien durch das ionische Potential hat. Zum besseren Verständnis dieses Effekts wird sie zuerst bei dem einfacheren zirkularen Feldverlauf untersucht. Bei zirkular polarisiertem Licht bewirkt das Coulomb-Potential eine Ablenkung der Elektronen. In Abb. 9.13(a) ist eine dreidimensional (3D) gerechnete Impulsverteilung für eine einzige Startphase zirkular polarisierten Lichts für den Fall mit und ohne Einfluss des Coulomb-Potentials gezeigt. Sowohl die Startphase als auch die Amplitude des elektrischen Feldes sind für beide Fälle gleich. Es ist zu beobachten, dass die meisten Elektronen zu höheren horizontalen Endimpulsen  $p_{hor}$  gelenkt werden. Die Begründung dafür ist vor allem der Einfluss des Coulomb-Potentials kurz nach dem Start des Elektrons (Abb. 9.13(b)). Ein weiterer Effekt ist die Abhängigkeit der Stärke des Coulomb-Einflusses vom senkrechten Startimpuls (Abb. 9.13(a)). Diese beschriebene Abhängigkeit ist auch für die Spiralstruktur in der Messung verantwortlich.



**Abbildung 9.13:** (a) Elektronenimpulsverteilung einer 3D-Rechnung, bei der die Elektronen nur bei einer einzigen Phase (einem einzigen Zeitpunkt) tunneln. Die Intensität beträgt  $I=6,8 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. Die Elektronenimpulsverteilung weiter links ergibt sich für ein Set von Trajektorien, welche das ionische Potential nicht sehen und nur vom Laserfeld getrieben werden. Bei der anderen Verteilung weiter rechts ist das Coulomb-Potential berücksichtigt und es ist eine Abhängigkeit der Stärke des Coulomb-Effekts von dem senkrechten Startimpuls erkennbar. In (b) ist je eine Trajektorie mit senkrechten Startimpulsen null für beide Fälle im Ortsraum gezeichnet. Unter Einfluss des Coulomb-Potentials (orange) wird das Elektron in positive Richtung abgelenkt, was zu einer Verschiebung zu positiven Impulsen  $p_{hor}$  führt. End- gegen Anfangsimpulsverteilung für eine Phase ohne (c) und mit (d) Berücksichtigung des Coulomb-Potentials.

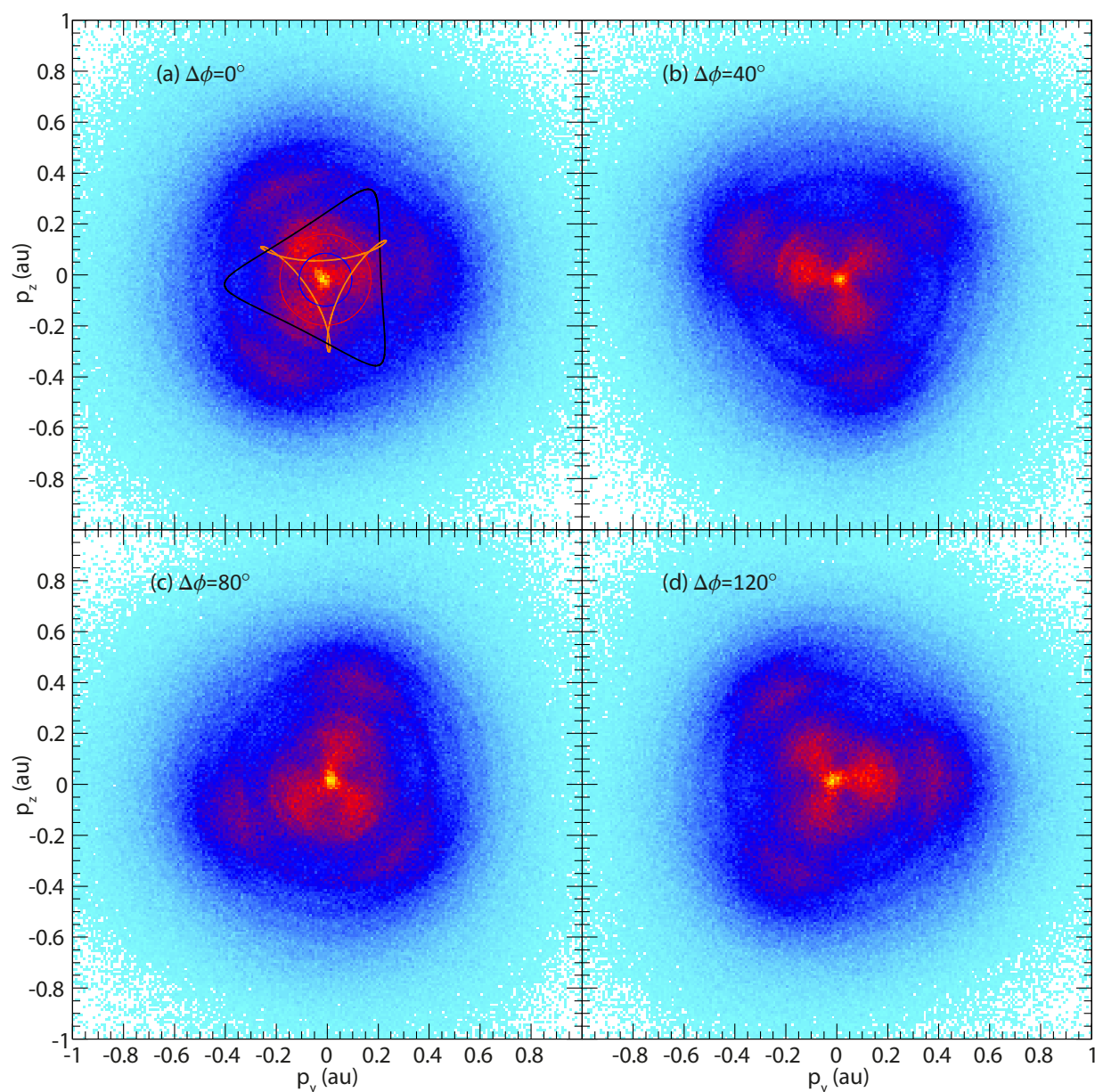
In einer 3D-Simulation mit dem CRTC-Feld mit den gleichen Intensitäten wie im Experiment bildet sich ebenfalls eine Spiralstruktur bei niedrigen Impulsen (Abb. 9.14).



**Abbildung 9.14:** 3D-Simulation der Elektronenimpulsverteilung nach der Ionisation durch ein CRTTC-Feld mit den gleichen Intensitäten wie im Experiment ( $I_{780nm}=1,28 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ,  $I_{390nm}=1,56 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ). Die Farbkodierung des Histogramms ist logarithmisch gewählt, weil die Spirale in der Simulation weniger prominent als in der Messung und so besser sichtbar ist.

### 9.3.4 Phasenabhängigkeit bei $I_{780nm}/I_{390nm}$ 3:1

Die Abhängigkeit der Impulsverteilung von der Phase zwischen den beiden Farben wurde in einer Messung mit dem Intensitätsverhältnis  $I_{780nm}/I_{390nm}=3:1$  ( $I_{780nm}=6,29 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ,  $I_{390nm}=2,12 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ) untersucht. Dabei wurden die Wedges von einem Verschiebetisch in  $20\mu\text{m}$ -Schritten mit  $8\text{s}$  Messzeit pro Schritt über eine Gesamtstrecke von  $6 \text{ mm}$  relativ zueinander verschoben. Die Impulsverteilung ist für vier verschiedene relative Phasen  $\Delta\phi$  von  $0^\circ$  bis  $120^\circ$  in Abb. 9.15 dargestellt.



**Abbildung 9.15:** Messung mit CRTC-Pulsen mit dem Intensitätsverhältnis  $I_{780nm}/I_{390nm}=3:1$  ( $I_{780nm}=6,29 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ,  $I_{390nm}=2,12 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ) bei vier verschiedenen Phasen zwischen den beiden Farben  $\Delta\phi=0^\circ$  (a),  $\Delta\phi=40^\circ$  (b),  $\Delta\phi=80^\circ$  (c) und  $\Delta\phi=120^\circ$  (d). In (a) ist zudem das Vektorpotential (schwarz) und das elektrische Feld (orange) des CRTC-Pulses schematisch eingezeichnet. Die Impulsverteilung ist über die Impulskomponente senkrecht zu beiden Feldrichtungen  $p_x$  integriert.

Bei  $\Delta\phi = 0^\circ$  sind die skalierten elektrischen Felder (780 nm  $\leftrightarrow$  rot, 390 nm  $\leftrightarrow$  blau, gemischt  $\leftrightarrow$  orange) und das Vektorpotential (schwarz) zum Zeitpunkt der Ionisation dargestellt. Wie bei der Messung mit dem 8:1-Verhältnis sind ebenfalls ATI-Ringe im 1,5 eV-Abstand vorhanden. Jedoch ist beim 3:1-Verhältnis der Schwerpunkt der Elektronenimpuls-

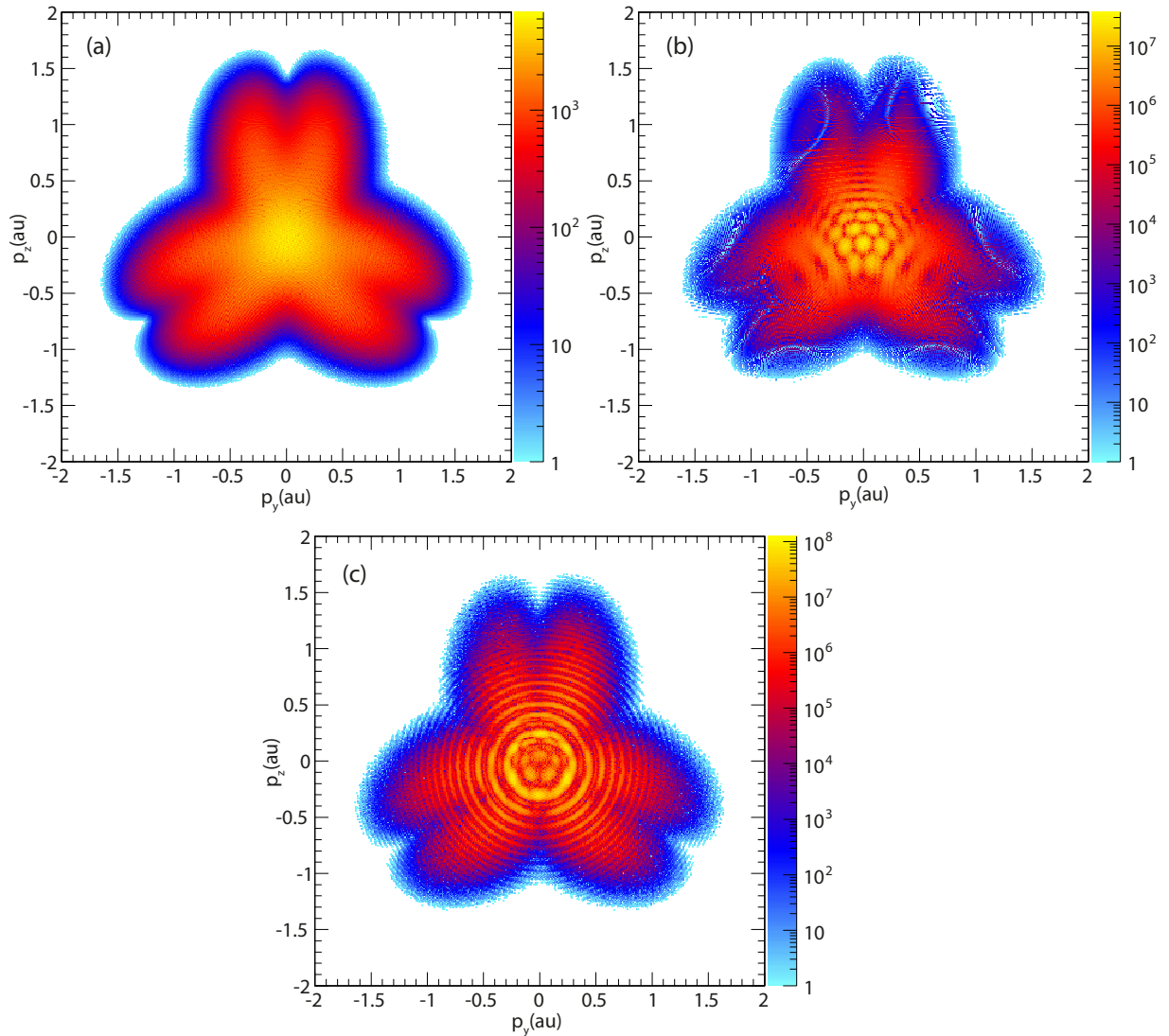
verteilung von den drei Inseln außen in Richtung der Spirale nach innen gewandert. Dieses Verhalten deckt sich mit der Form des Vektorpotentials, welches bei einem Intensitätsverhältnis von 8:1 sichtlich runder ist als bei dem Intensitätsverhältnis 3:1.

## 9.4 Anwendungsmöglichkeiten

Der sich den gezeigten Messungen anschließende experimentelle Schritt ist, eine genauere und reproduzierbarere Kontrolle über die Feldparameter zu gewinnen. Dazu ist es sinnvoll, neben der motorisierten Einstellung der Phase auch die Wellenplättchen zur Anpassung der Elliptizitäten und die Strahlabschwächer auf motorisierte und softwaregesteuerte Weise zu kontrollieren. So ist eine systematische Untersuchung der Abhängigkeit der Elektronenimpulsverteilung von den Feldparametern möglich. Die daraus resultierenden Ergebnisse, welche aus einem Set von Impulsverteilungen enormer Vielfältigkeit bestünden, könnten die Grundlage für die Untersuchung interessanter physikalischer Effekte liefern.

### 9.4.1 Intracycle-Interferenzen

Bestimmte Feldparametern könnten zu einer neuen Art von Intracycle-Interferenz (Kapitel 7) führen. Wird das Intensitätsverhältnis zwischen den beiden Farben so geändert, dass die drei Inseln in der Elektronenimpulsverteilung (z.B. Abb. 9.8) nach innen wandern bis sie sich überlagern, kommt es zur Interferenz zwischen ihnen. In Abb. 9.16(b) ist ein mit der QTMC-Simulation (Abschnitt 4.3) abgeschätztes Aussehen der resultierenden Interferenzen in Form eines Wabenmusters abgebildet.



**Abbildung 9.16:** QTMC-Simulation der Tunnelionisation mit dem CRTC-Feld mit dem Intensitätsverhältnis  $I_{800}/I_{400} = 1/4$  unter Vernachlässigung des Coulomb-Potentials. Im Gegensatz zu (b),(c) ist in (a) die zu erwartende Impulsverteilung ohne Interferenzeffekte dargestellt. In (b) ist nur die Ionisation einer Schwingung des Laserfeldes berücksichtigt, was zu dem Wabemuster durch die Intracycle-Interferenzen führt, während in (c) die Intercycle-Interferenz (ATI-Ringe) durch Berücksichtigung der Ionisation aus zwei Laserperioden zu sehen ist.

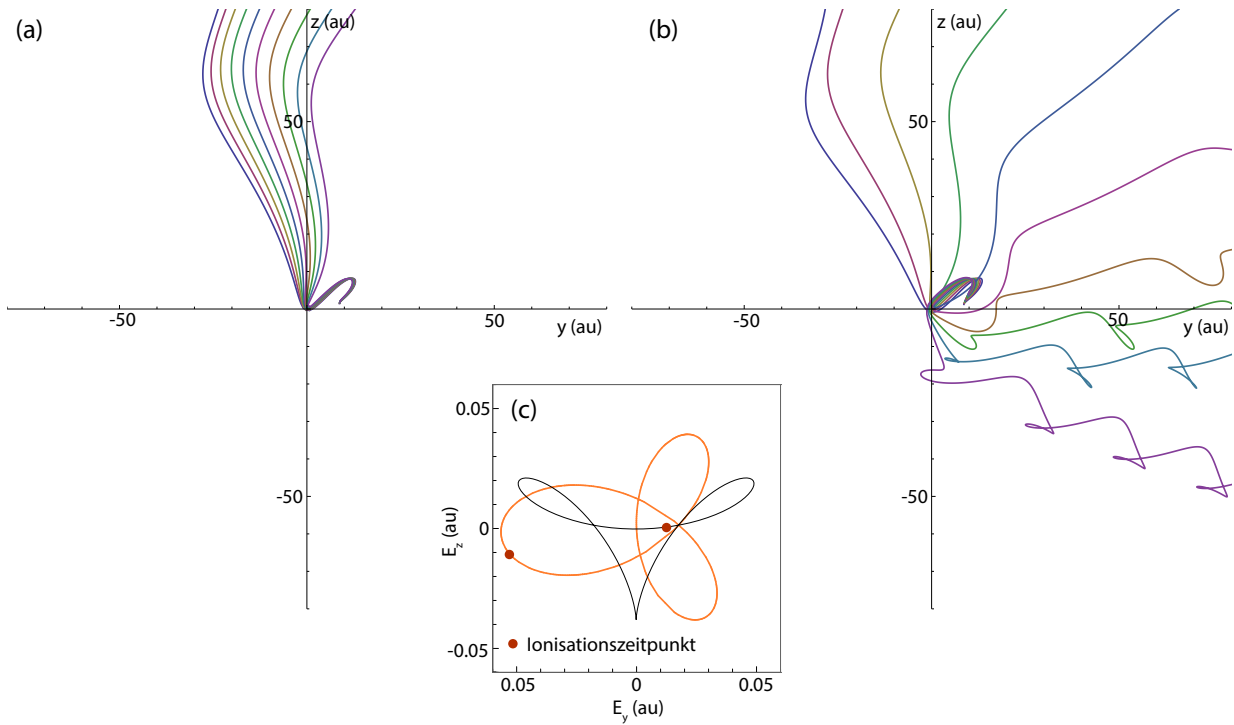
Zum Vergleich ist in Abb. 9.16(a) die in etwa zu erwartende Impulsverteilung ohne Berücksichtigung von Interferenzeffekten dargestellt. Hat der Laserpuls nicht nur eine Periode, wird das Wabemuster noch durch Intercycle Interferenzen (ATI-Ringe) überlagert Abb. 9.16(c). Diese Simulation dient jedoch nur als Abschätzung, da der Einfluss durch das ionische Potential hier nicht in Betracht gezogen wurde. In dem Interferenzmuster spiegelt sich die relative Phase zwischen den Wellenpaketen wider. Die Phase der getunnelten Elektronenwellenpakete setzt sich aus der Phase des gebundenen Elektrons vor dem

Tunnelvorgang, der angesammelten Phase während des Tunnelns und der Propagation zusammen. Die Laserparameter können in einer Messung so eingestellt werden, dass der Tunnelvorgang und die Propagation annähernd gleich bleiben und sich das Interferenzmuster je nach Phase des gebundenen Elektrons ändert. Zum Beispiel wäre es interessant, die Interferenzmuster von He (1s) mit denen von Ne (2p) zu vergleichen.

### 9.4.2 Rückstreuende Elektronen

In [88, 89] wurde bereits die Erzeugung höherer Harmonischer mit CRTC-Pulsen untersucht, deren Entstehung auf die Rekollision des Elektrons mit dem Mutterion zurückzuführen ist. Hat das rückstreuende Elektron während seiner Propagation im Laserfeld eine entsprechende Energie aufgenommen, kann es auch zu anderen Prozessen kommen, wie z.B. zur Doppelionisation. In CRTC-Pulsen wird erwartet, dass der Rekollisionsprozess nur für Elektronen möglich ist, welche innerhalb von schmalen Zeitfenstern während des Laserpulses geboren werden. Weil so die Rekollision nur für bestimmte Elektronengruppen möglich ist, könnte die Verteilung der Energie der rückkehrenden Elektronen schmal ( $<2\text{eV}$ ) sein. Daher ist eine weitere Idee zur Verwendung der CRTC-Pulse das Einstellen der Energie der rückstreuenden Elektronen durch Manipulation der Feldparameter.

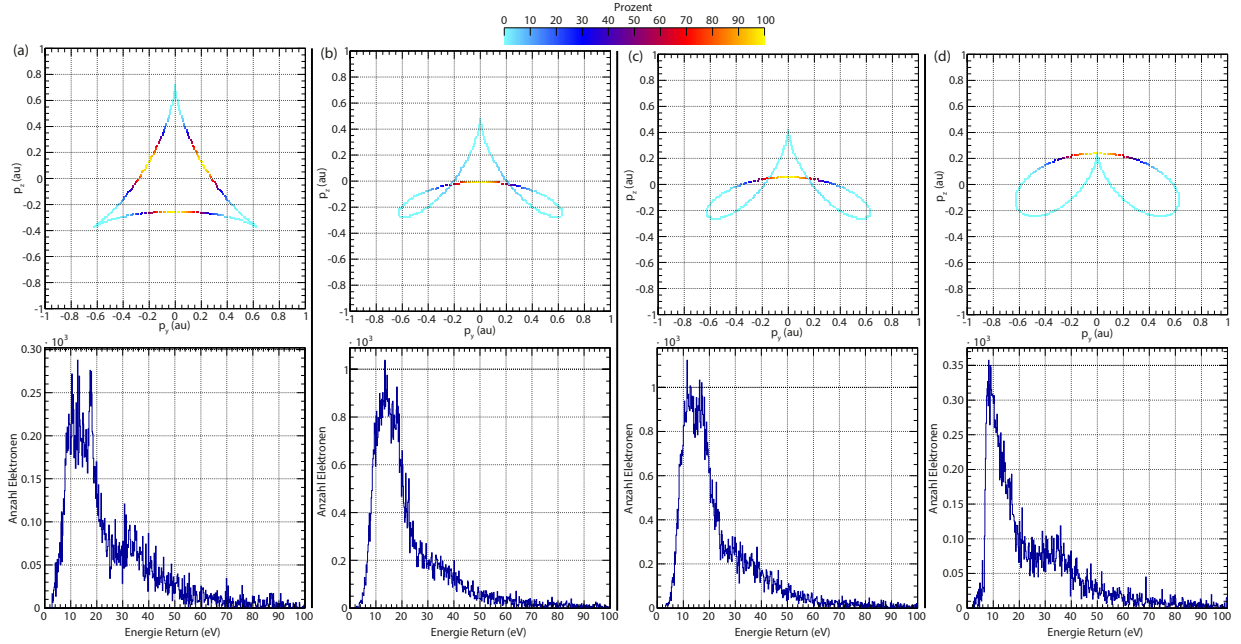
Die Rückstreuwahrscheinlichkeit ist abhängig von der Geometrie des elektrischen Feldes und tritt nur bei bestimmten Phasen des Laserpulses auf. Der simulierte räumliche Verlauf eines Sets solcher rückstreuenden Trajektorien in der Polarisationssebene ist in Abb. 9.17 gezeigt. Das in der Simulation verwendete Laserfeld ist so eingestellt, dass der 780 nm-Anteil elliptisch ( $\epsilon = 0,5$ ) und der 390 nm-Anteil zirkular polarisiert ist, da bei dieser Feldgeometrie (Abb. 9.17(c)) viele rückstreuende Elektronen zu erwarten sind. In Abb. 9.17(a) sind zehn Trajektorien dargestellt, bei denen die Startphase innerhalb des CRTC-Pulses nur sehr schwach variiert wird ( $\approx 0,03$  fs), während sie sich in Abb. 9.17(b) über einen größeren Bereich ändert ( $\approx 0,1$  fs).



**Abbildung 9.17:** Trajektorien (a), (b) für die in (c) gezeichnete Feldgeometrie und dem rot markierten Startzeitpunkt.

Mithilfe der in Kapitel 4.3 beschriebenen 3D-Simulation der getunnelten Elektronen unter dem Einfluss des kombinierten Laser- und Coulomb-Feldes wurde die Energieverteilung der zum Kern zurückkehrenden Elektronen für verschiedene CRTC-Feldgeometrien ermittelt. Dabei wurden die in der Simulation propagierten Elektronen nachverfolgt und ihr kleinster Abstand vom Kern nach dem Tunneln bestimmt. Wichtig war sicherzustellen, dass sich die Elektronen nach dem Tunneln auch vom Kern wegbewegt und sich ihm anschließend wieder genähert haben. In den folgenden Energieverteilungen der rückkehrenden Elektronen ist die Bedingung enthalten, dass sie zu einem Zeitpunkt während des Laserpulses einen Abstand von weniger als 5 au hatten. In Abb. 9.18 sind die Energien der rückkehrenden Elektronen für vier verschiedene Elliptizitäten des 780 nm Feldes  $\epsilon_{780nm} = 1 - E_{780,z}/E_{780,y}$  des CRTC-Feldes dargestellt. Die vier gerechneten Elliptizitäten betragen  $\epsilon_{780nm} = \{0; 0, 5; 0, 625; 1\}$ . In der Abbildung ist zusätzlich zur Veranschaulichung oberhalb der Energieverteilungen der jeweilige Endimpuls des verwendeten Feldes ohne den Einfluss des Coulomb-Potentials und nur mit dem Anfangsimpuls null gezeigt. Wichtig zu beachten ist jedoch, dass die Energieverteilungen mit Inklusion des Coulomb-Potentials und mit gaußförmiger Startimpulsverteilung gerechnet sind. Die Intensitäten für Abb. 9.18(a) betragen  $I_{780nm} = I_{390nm} = 5, 6 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ .

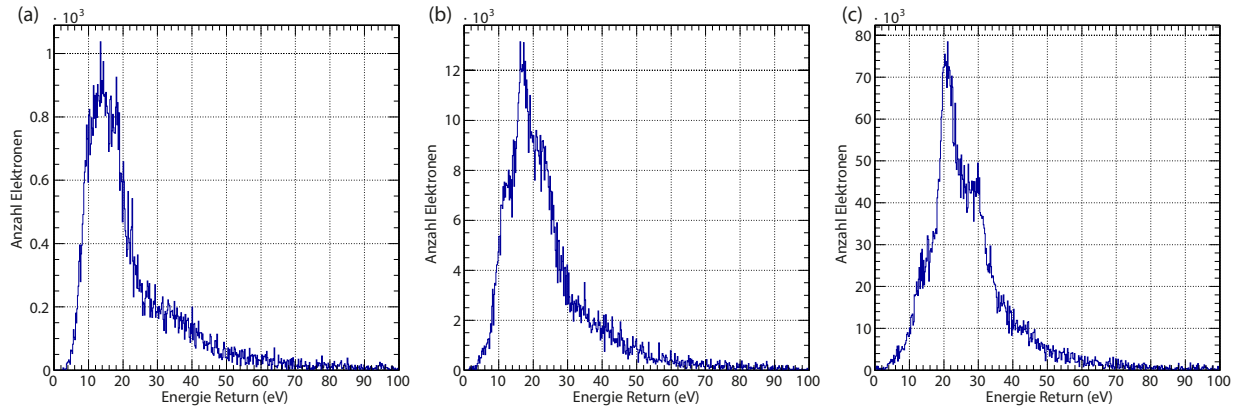




**Abbildung 9.18:** Simulierte Energieverteilungen der zum Ion zurückkehrenden Elektronen unter Berücksichtigung des Coulomb-Potentials (unten). Die der jeweiligen Feldgeometrie entsprechenden Endimpulsverteilungen unter Vernachlässigung des Coulomb-Potentials und der Startimpulsverteilung (oben). Die Elliptizitäten des 780 nm Feldes und Feldstärken sind (a):  $\epsilon_{780nm} = 0$ ,  $\{E_{780,y} = E_{390,y} = E_{390,z} = E_{780,z}\} = 0,028au$ , (b):  $\epsilon_{780nm} = 0,5$ ,  $\{E_{780,y} = E_{390,y} = E_{390,z}; E_{780,z}\} = \{0,028au; 0,014au\}$ , (c):  $\epsilon_{780nm} = 0,625$ ,  $\{E_{780,y} = E_{390,y} = E_{390,z}; E_{780,z}\} = \{0,028au; 0,0133au\}$  und (d):  $\epsilon_{780nm} = 1$ ,  $\{E_{780,y} = E_{390,y} = E_{390,z}; E_{780,z}\} = \{0,028au; 0au\}$ .

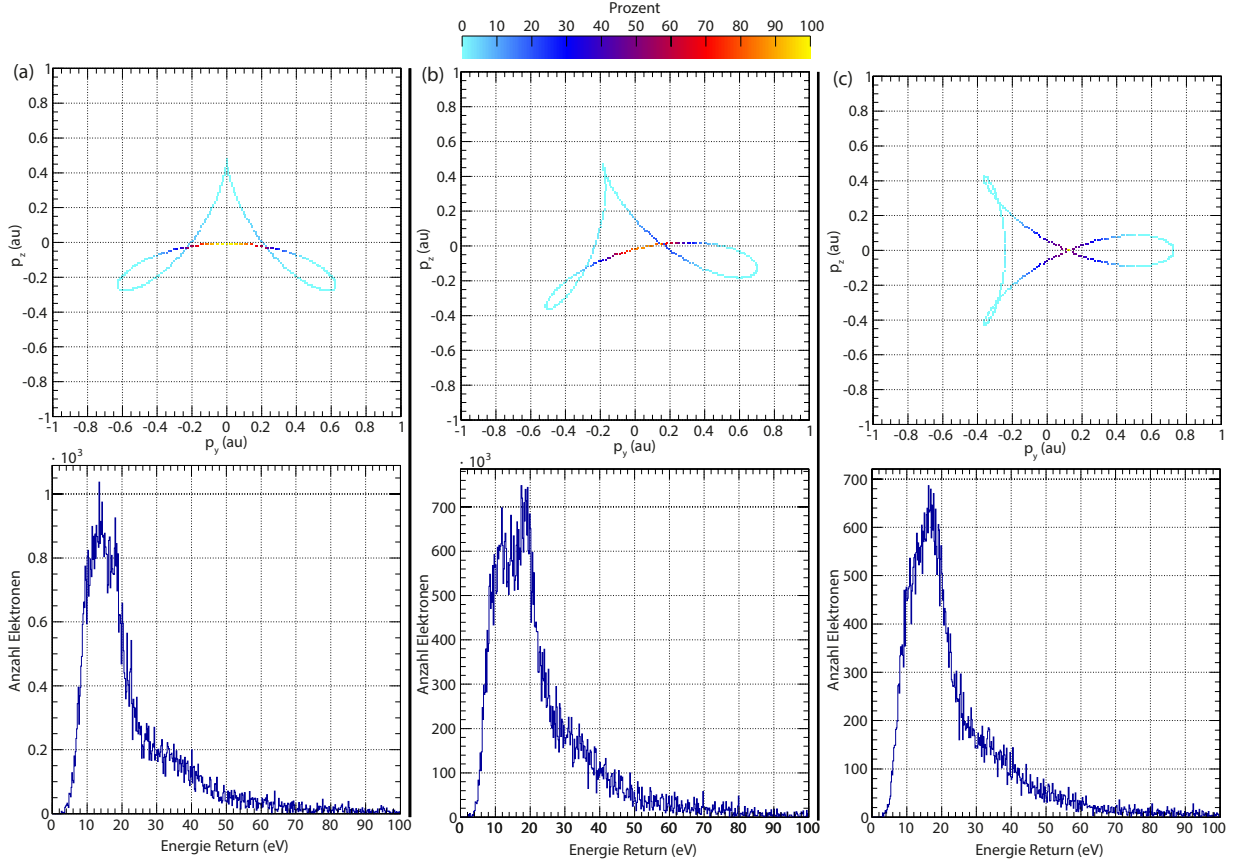
Bei allen Elliptizitäten ist die Energieverteilung in etwa 10 eV breit und um 15 eV zentriert. Nur die Anzahl der rückstreuenden Elektronen variiert stark und ist bei  $\epsilon = 0,5$  und  $\epsilon = 0,625$  um ca. Faktor drei größer als bei  $\epsilon = 0$  und  $\epsilon = 1,0$ .

Bei Erhöhung der Feldstärke des CRTC-Pulses ist zu erwarten, dass sich auch die Rückkehrenergie der Elektronen vergrößert. Die entsprechenden Energiespektren dieser Elektronen sind für drei Feldstärken in Abb. 9.19 gezeigt. Die genauen Werte für die Amplituden der elektrischen Feldstärken sind in der Bildunterschrift enthalten. Bei diesen höheren Feldstärken und gleichbleibender Elliptizität hat sich die Form des Peaks sich etwas verändert und er verschiebt sich wie erwartet zu höheren Energien. Das Zentrum des Peaks ist bei 9.19(b) auf ca. 19 eV und bei 9.19(c) auf ca. 22 eV gestiegen.



**Abbildung 9.19:** Simulierte Energieverteilungen der zum Ion zurückkehrenden Elektronen unter Berücksichtigung des Coulomb-Potentials für die Elliptizität  $\epsilon_{780nm} = 0,5$  und steigende Feldstärken. (a)  $\{E_{780,y} = E_{390,y} = E_{390,z}; E_{780,z}\} = \{0,028au; 0,014au\}$ , (b)  $\{E_{780,y} = E_{390,y} = E_{390,z}; E_{780,z}\} = \{0,035au; 0,0175au\}$ , (c)  $\{E_{780,y} = E_{390,y} = E_{390,z}; E_{780,z}\} = \{0,042au; 0,021au\}$ .

Zuletzt wurde noch untersucht, wie die Energieverteilung der rückkehrenden Elektronen von der Phase zwischen den beiden Farben bei gleich bleibender Elliptizität  $\epsilon_{780nm} = 0,5$  und Feldstärke abhängt. In Abb. 9.20 sind die Endimpulsverteilungen ohne Coulomb-Potential in der oberen Bildhälfte und die dazugehörigen Rückkehrenergieverteilungen darunter angeordnet. Zum Vergleich ist nochmal der gleiche Fall wie in Abb. 9.18(b) gezeigt. Die Breite und Position der Verteilung in Abb. 9.20(b), (c) ändern sich kaum im Vergleich zu Abb. 9.20(a), während die Anzahl der rückkehrenden Elektronen um etwa ein Drittel abnimmt.



**Abbildung 9.20:** Endimpulse und Energieverteilungen für verschiedene Phasen zwischen den beiden Farben. Die Elliptizitäten  $\epsilon_{780nm} = 0,5$  und Feldstärken  $\{E_{780,y} = E_{390,y} = E_{390,z}; E_{780,z}\} = \{0,028au; 0,014au\}$  sind für alle drei Phasen (a)-(c) gleich.

Mithilfe der Simulation wurde festgestellt, dass die Energieverteilung der zum Ion zurückkehrenden Elektronen bei den verwendeten Feldparametern aus einem etwa 10 eV breiten Peak bei etwa 15 eV und einer kontinuierlich abnehmenden Flanke bis ca. 100 eV besteht. Die Form und Position des Peaks konnte durch Manipulation der Feldparameter verändert werden. Bei umfangreicher und systematischer Untersuchung der Energieverteilungen der rückkehrenden Elektronen für verschiedene CRTC-Feldgeometrien in der Zukunft könnte es möglich werden, einen für das entsprechende physikalische Experiment passenden Rückstreupeak zu züchten.

# Kapitel 10

## Zusammenfassung und Ausblick

Mit der vorliegenden Arbeit wurden neue Erkenntnisse über das Verhalten von Elektronenwellenpaketen gewonnen, welche in starken Laserfeldern geboren werden. Durch Formen der ionisierenden Laserfelder konnten sie gesteuert und so neuartige physikalische Effekte untersucht werden.

Beginnend mit dem einfachsten Fall, einem Laserpuls einer Farbe und linearer Polarisation, wurden doppelt angeregte Zustände durch den Mechanismus der „Frustrated Tunnel Ionization“ erzeugt, welche sich durch Autoionisation abregten. Auch konnte mit der gleichen Laserfeldgeometrie und einer besonders hochauflösenden Impulsmessung mithilfe einer Simulation die Herkunft eines bei Impulsspektroskopie Experimenten bekannten Peaks nahe der Energie null geklärt werden: die durch das Laserfeld angeregten Zustände werden durch das kleine elektrische Feld des Spektrometers verzögert ionisiert.

Ein neuer Freiheitsgrad der Steuerung der getunnelten Elektronenwellenpakete kam durch die Änderung der Phase eines senkrecht zueinander polarisierten Zwei-Farben-Feldes hinzu. Mit diesem konnten Elektronenwellenpakete, welche bei aneinanderliegenden Viertelwellenperioden geboren wurden, je nach Phase zwischen den beiden Farben in die gleiche oder die entgegengesetzte Richtung gelenkt werden. So war das Sichtbarmachen und das Ein- und Ausschalten eines bisher selten untersuchten Interferenzkanals möglich. Die Identifikation dieses Kanals gelang durch eine semiklassische und trajektorienbasierte Simulation. Die gleichen Messdaten beinhalteten die Überraschung, dass der Anteil der Coulomb-fokussierten Elektronen scheinbar nicht wie erwartet von der Phase zwischen den beiden Farben abhängt. Eine klassische Monte-Carlo Simulation zeigte schließlich, dass sich die gleichbleibende Coulomb-fokussierte Struktur im Elektronenimpulsspektrum je nach Phase aus anderen Startimpulsen der getunnelten Elektronen zusammensetzt.

Der allgemeinste Fall des Zwei-Farben-Feldes wurde im letzten Ergebniskapitel behandelt. Dabei wurden Elektronenimpulsverteilungen aufgenommen, welche bei Laserpulsen bestehend aus entgegengesetzt zirkular polarisierten Pulsen zweier Farben geboren werden. Mittels der Simulation konnte die Spiralstruktur in der Elektronenimpulsverteilung auf die Wechselwirkung der Elektronen mit dem Coulomb-Potential zurückgeführt werden. Auch wurde festgestellt, dass die Änderung der Phase zwischen den beiden Farben die erwartete Drehung der gesamten Impulsverteilung zur Folge hatte.

Im Laufe dieser Arbeit wurde mit den Kapitel für Kapitel immer komplexer werdenden Laserfeldern gezeigt, dass die gezielte Steuerung der getunnelten Elektronenwellenpakete möglich und zudem durch Simulationen vorhersagbar ist. Daher ist der naheliegendste nächste Schritt der Aufbau eines Versuchs, mit dem alle der bereits beschriebenen Feldparameter eines Zwei-Farben-Feldes reproduzierbar zu kontrollieren sind. Mögliche physikalische Anwendungen wurden bereits ausführlich in Abschnitt 9.4 mithilfe der semiklassischen Simulation untersucht. Eine der vorgeschlagenen Anwendungen ist die neuartige Realisierung der schon untersuchten Intracycle-Interferenz und der damit verbundenen Extraktion der relativen Phase zwischen den Elektronenwellenpaketen. Außerdem könnte durch Anpassen der Feldgeometrien die gezielte Manipulation der Energie der rückstreuenden Elektronen möglich sein.

# Veröffentlichungen des Autors

## In dieser Arbeit behandelt

- Elias Diesen, Ulf Saalman, **Martin Richter**, Maksim Kunitski, Reinhard Dörner, and Jan M. Rost, *Dynamical characteristics of Rydberg electrons released by a weak electric field*, Phys. Rev. Lett. **116**, 143006 (2016), (behandelt in Kapitel 6)
- **Martin Richter**, Maksim Kunitski, Markus Schöffler, Till Jahnke, Lothar P.H. Schmidt, Min Li, Yunquan Liu, and Reinhard Dörner, *Streaking Temporal Double-Slit Interference by an Orthogonal Two-Color Laser Field*, Phys. Rev. Lett. **114**, 143001 (2015), (behandelt in Kapitel 7)
- **Martin Richter**, Maksim Kunitski, Markus Schöffler, Till Jahnke, Lothar P.H. Schmidt, and Reinhard Dörner, *Origin and phase dependence of Trajectory-resolved Coulomb Effects in an Orthogonal Two-Color Laser Field*, eingereicht in Phys. Rev. A, (behandelt in Kapitel 8)

## Weitere

- Maksim Kunitski, **Martin Richter**, Mark D. Thomson, Arno Vredenberg, Jian Wu, Till Jahnke, Markus Schöffler, Horst Schmidt-Böcking, Hartmut G. Roskos, and Reinhard Dörner, *Optimization of single-cycle terahertz generation in LiNbO3 for sub-50 femtosecond pump pulses*, Optics Express, Vol. **21**, No. 6, 6806 (2013)
- Jian Wu, Maia Magrakvelidze, Lothar Ph. H. Schmidt, Maksim Kunitski, T. Pfeifer, Markus Schöffler, Martin Pitzer, **Martin Richter**, Stefan Voss, Hendrik Sann, Hong-Keun Kim, Julian Lower, Till Jahnke, Achim Czasch, Uwe Thumm, and Reinhard Dörner, *Understanding the role of phase in chemical bond breaking with coincidence angular streaking*, Nature Communications **4**, 2177 (2013)
- Kevin Henrichs, Markus Waitz, Florian Trinter, Hong-Keun Kim, Adrian Menssen, Helena Gassert, Hendrik Sann, Till Jahnke, Jian Wu, Martin Pitzer, **Martin Richter**, Markus Schöffler, Maksim Kunitski, and Reinhard Dörner, *Observation of Electron Energy Discretization in Strong Field Double Ionization*, Phys. Rev. Lett. **111**, 113003 (2013)

- Alexander Hartung, Felipe Morales, Maksim Kunitski, Kevin Henrichs, Alina Laucke, **Martin Richter**, Till Jahnke, Anton Kalinin, Markus Schöffler, Lothar Ph. H. Schmidt, Misha Ivanov, Olga Smirnova, and Reinhard Dörner, *Electron spin polarization in strong-field ionization of Xenon atoms*, under Review in Nature Photonics
- Stefan Zeller, Maksim Kunitski, Jörg Voigtsberger, Anton Kalinin, Alexander Schottelius, Carl Schober, Markus Waitz, Hendrik Sann, Alexander Hartung, Tobias Bauer, Martin Pitzer, Florian Trinter, Christoph Goihl, Christian Janke, **Martin Richter**, Gregor Kastirke, Miriam Weller, Achim Czasch, Markus Braune, Robert E. Grisenti, Wieland Schöllkopf, Lothar Ph. H. Schmidt, Markus Schöffler, Joshua Brown Williams, Till Jahnke, Reinhard Dörner, *Imaging the He<sub>2</sub> quantum halo state using a free electron laser*, under Review in Phys. Rev. Lett.
- Florian Trinter, Tsveta Miteva, Miriam Weller, Sebastian Albrecht, Alexander Hartung, **Martin Richter**, Joshua Williams, Averell Gatton, Bishwanath Gaire, Thorsten Weber, James Sartor, Allen Landers, Ben Berry, Vasili Stumpf, Kirill Gokhberg, Reinhard Dörner, Till Jahnke, *A molecular movie of Interatomic Coulombic Decay in NeKr*, wird eingereicht in Phys. Rev. Lett.

# Literatur

- [1] H.B. van Linden van den Heuvell und H.G. Muller, *Limiting cases of excess-photon ionization in Multiphoton Processes*. Cambridge University Press, (1987), 25–34.
- [2] Ingolf V. Hertel und Claus-Peter Schulz, “Atome in externen Feldern”. *Atome, Moleküle und optische Physik 1*. Springer-Lehrbuch. Springer Berlin Heidelberg, 2008, 281–345. DOI: [10.1007/978-3-540-30617-7\\_8](https://doi.org/10.1007/978-3-540-30617-7_8). URL: [http://dx.doi.org/10.1007/978-3-540-30617-7\\_8](http://dx.doi.org/10.1007/978-3-540-30617-7_8).
- [3] J. F. Grasbon, “Atomare Prozesse in starken Laserfeldern”. Dissertation. Ludwig-Maximilians-Universität, 2001.
- [4] G Petite, P Agostini und H G Muller, *Intensity dependence of non-perturbative above-threshold ionisation spectra: experimental study*. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, **21**,24 (1988), 4097. URL: <http://stacks.iop.org/0953-4075/21/i=24/a=010>.
- [5] N. B. Delone und V. P. Krainov, *Energy and angular electron spectra for the tunnel ionization of atoms by strong low-frequency radiation*. J. Opt. Soc. Am. B, **8**,6 (1991), 1207–1211. DOI: [10.1364/JOSAB.8.001207](https://doi.org/10.1364/JOSAB.8.001207). URL: <http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-8-6-1207>.
- [6] N B Delone und Vladimir P Krainov, *Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field*. Physics-Uspekhi, **41**,5 (1998), 469. URL: <http://stacks.iop.org/1063-7869/41/i=5/a=R03>.
- [7] Andre Staudte, “Subfemtosecond Electron Dynamics of H2 in Strong Fields”. Dissertation. Goethe-Uni Frankfurt, 2005. URL: <http://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/>.
- [8] Ingo Barth und Olga Smirnova, *Nonadiabatic tunneling in circularly polarized laser fields: Physical picture and calculations*. Phys. Rev. A, **84**, (6 2011), 063415. DOI: [10.1103/PhysRevA.84.063415](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.84.063415). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.84.063415>.
- [9] Tian-Min Yan und D. Bauer, *Sub-barrier Coulomb effects on the interference pattern in tunneling-ionization photoelectron spectra*. Phys. Rev. A, **86**, (5 2012), 053403. DOI: [10.1103/PhysRevA.86.053403](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.86.053403). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.86.053403>.



- [10] G G Paulus, W Becker, W Nicklich und H Walther, *Rescattering effects in above-threshold ionization: a classical model*. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, **27**,21 (1994), L703. URL: <http://stacks.iop.org/0953-4075/27/i=21/a=003>.
- [11] L. V. Keldysh, *Ionization in the Field of a Strong Electromagnetic Wave*. Sov. Phys. JETP, **20**,5 (1964), 1307. URL: <http://www.jetp.ac.ru/cgi-bin/e/index/e/20/5/p1307?a=list>.
- [12] Kapteyn-Murnane Laboratories Inc., *Operators Manual: Dragon<sup>TM</sup> Ultrafast Laser Amplifier System*. 2007.
- [13] M. Perry, *Multilayer Dielectric Gratings: Increasing the Power of Light*. Science & Technology Review, (1995). URL: [https://str.llnl.gov/str/pdfs/09\\_95.2.pdf](https://str.llnl.gov/str/pdfs/09_95.2.pdf).
- [14] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer und H. Schmidt-Böcking, *Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: a ‘momentum microscope’ to view atomic collision dynamics*. Physics Reports, **330**,2–3 (2000), 95–192. DOI: [http://dx.doi.org/10.1016/S0370-1573\(99\)00109-X](http://dx.doi.org/10.1016/S0370-1573(99)00109-X). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S037015739900109X>.
- [15] J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L. Ph. H. Schmidt und H. Schmidt-Böcking, *Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes*. Rep. Prog. Phys., **66**, (2003), 1463 – 1545.
- [16] Till Jahnke, “Interatomic Coulombic Decay”. Dissertation. Goethe-Uni Frankfurt, 2005. URL: <http://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/>.
- [17] M Barr, K M O’Donnell, A Fahy, W Allison und P C Dastoor, *A desktop supersonic free-jet beam source for a scanning helium microscope (SHeM)*. Measurement Science and Technology, **23**,10 (2012), 105901. URL: <http://stacks.iop.org/0957-0233/23/i=10/a=105901>.
- [18] RoentDek Handels GmbH, *PARTICLE / PHOTON DETECTORS*. 2014. URL: <http://www.roentdek.com/products/detectors/>.
- [19] Wikipedia, *Mikrokanalplatte* — Wikipedia, *Die freie Enzyklopädie*. [Online; Stand 27. Mai 2014]. 2013. URL: <http://de.wikipedia.org/w/index.php?title=Mikrokanalplatte&oldid=118921457>.
- [20] Joseph Ladislav Wiza, *Microchannel plate detectors*. Nuclear Instruments and Methods, **162**,1–3 (1979), 587 –601. DOI: [http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X\(79\)90734-1](http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X(79)90734-1). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0029554X79907341>.
- [21] RoentDek Handels GmbH, *MCP Delay Line Detector Manual*. Version 11.0.1403.1. URL: <http://www.roentdek.com/manuals/>.
- [22] Moritz Meckel, “Laser-Induced Electron Tunneling and Diffraction”. Dissertation. Goethe-Uni Frankfurt, 2011. URL: <http://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/>.

- [23] RoentDek Handels GmbH, *The FAMP8, (D)FAMP6, PreFAMP6, FAMP3 and FAMP1+*. Version 11.0.1506.1. URL: <http://www.roentdek.com/manuals/>.
- [24] RoentDek Handels GmbH, *The Constant Fraction Discriminators CFD8c, CFD7x, CFD4c, CFD1c and CFD1x*. Version 11.0.1403.1. URL: <http://www.roentdek.com/manuals/>.
- [25] RoentDek Handels GmbH, *TDC8HP System*. Version 11.0.1505.1. URL: <http://www.roentdek.com/manuals/>.
- [26] Mirko Hattabaß, “Koinzidenz-Spektroskopie an Oberflächen: Zwei-Elektronen-Photoemission von Cu(111)”. Dissertation. Goethe-Uni Frankfurt, 2004. URL: <http://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/>.
- [27] M. Hattass, T. Jalowy, A. Czasch, Th. Weber, T. Jahnke, S. Schössler, L. Ph. Schmidt, O. Jagutzki, R. Dörner und H. Schmidt-Böcking, *A 2pi spectrometer for electron–electron coincidence studies on surfaces*. Review of Scientific Instruments, **75**,7 (2004), 2373–2378. DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1765764>. URL: <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/75/7/10.1063/1.1765764>.
- [28] A. Czasch, *RESORT64*. 2014. URL: <http://www.roentdek.com/>.
- [29] M. Kunitski, *Korrespondenz*. 2014.
- [30] P. B. Corkum, *Plasma perspective on strong field multiphoton ionization*. Phys. Rev. Lett., **71**, (13 1993), 1994–1997. DOI: [10.1103/PhysRevLett.71.1994](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.71.1994). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.71.1994>.
- [31] Bambi HuP, Jie Liu und Shi gang Chen, *Plateau in above-threshold-ionization spectra and chaotic behavior in rescattering processes*. Physics Letters A, **236**,5–6 (1997), 533 –542. DOI: [http://dx.doi.org/10.1016/S0375-9601\(97\)00811-6](http://dx.doi.org/10.1016/S0375-9601(97)00811-6). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0375960197008116>.
- [32] S.V. Popruzhenko und D. Bauer, *Strong field approximation for systems with Coulomb interaction*. Journal of Modern Optics, **55**,16 (2008), 2573–2589. DOI: [10.1080/09500340802161881](https://doi.org/10.1080/09500340802161881). URL: <http://dx.doi.org/10.1080/09500340802161881>.
- [33] Tian-Min Yan, S. V. Popruzhenko, M. J. J. Vrakking und D. Bauer, *Low-Energy Structures in Strong Field Ionization Revealed by Quantum Orbits*. Phys. Rev. Lett., **105**, (25 2010), 253002. DOI: [10.1103/PhysRevLett.105.253002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.105.253002). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.105.253002>.
- [34] Ming-Hui Xu, Liang-You Peng, Zheng Zhang, Qihuang Gong, Xiao-Min Tong, Evgeny A. Pronin und Anthony F. Starace, *Attosecond Streaking in the Low-Energy Region as a Probe of Rescattering*. Phys. Rev. Lett., **107**, (18 2011), 183001. DOI: [10.1103/PhysRevLett.107.183001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.183001). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.107.183001>.

- [35] M. V. Frolov, D. V. Knyazeva, N. L. Manakov, A. M. Popov, O. V. Tikhonova, E. A. Volkova, Ming-Hui Xu, Liang-You Peng, Liang-Wen Pi und Anthony F. Starace, *Validity of Factorization of the High-Energy Photoelectron Yield in Above-Threshold Ionization of an Atom by a Short Laser Pulse*. Phys. Rev. Lett., **108**, (21 2012), 213002. DOI: [10.1103/PhysRevLett.108.213002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.213002). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.108.213002>.
- [36] Min Li, Ji-Wei Geng, Hong Liu, Yongkai Deng, Chengyin Wu, Liang-You Peng, Qihuang Gong und Yunquan Liu, *Classical-Quantum Correspondence for Above-Threshold Ionization*. Phys. Rev. Lett., **112**, (11 2014), 113002. DOI: [10.1103/PhysRevLett.112.113002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.113002). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.112.113002>.
- [37] M. J. Dahlström, *Strong Field Approximation for High Order Harmonic Generation with  $\omega/2\omega$  Laser Fields*. Lund Reports on Atomic Physics, LRAP-381, (2007).
- [38] T. Nubbemeyer, K. Gorling, A. Saenz, U. Eichmann und W. Sandner, *Strong-Field Tunneling without Ionization*. Phys. Rev. Lett., **101**, (23 2008), 233001. DOI: [10.1103/PhysRevLett.101.233001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.233001). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.101.233001>.
- [39] B. Manschwetus, T. Nubbemeyer, K. Gorling, G. Steinmeyer, U. Eichmann, H. Rottke und W. Sandner, *Strong Laser Field Fragmentation of H<sub>2</sub>: Coulomb Explosion without Double Ionization*. Phys. Rev. Lett., **102**, (11 2009), 113002. DOI: [10.1103/PhysRevLett.102.113002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.102.113002). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.102.113002>.
- [40] J. Wu, A. Vredenburg, B. Ulrich, L. Ph. H. Schmidt, M. Meckel, S. Voss, H. Sann, H. Kim, T. Jahnke und R. Dörner, *Multiple Recapture of Electrons in Multiple Ionization of the Argon Dimer by a Strong Laser Field*. Phys. Rev. Lett., **107**, (4 2011), 043003. DOI: [10.1103/PhysRevLett.107.043003](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.043003). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.107.043003>.
- [41] Lutz Fechner, “High resolution experiments on strong-field ionization of atoms and molecules - test of tunneling theory, the role of doubly excited states, and channel-selective electron spectra”. Dissertation. Combined Faculties of the Natural Sciences und Mathematics of the Ruperto-Carola-University of Heidelberg, Germany, 2014. URL: <http://archiv.ub.uni-heidelberg.de/volltextserver/17715/>.
- [42] Lutz Fechner, Nicolas Camus, Andreas Krupp, Joachim Ullrich, Thomas Pfeifer und Robert Moshhammer, *Creation and survival of autoionizing states in strong laser fields*. Phys. Rev. A, **92**, (5 2015), 051403. DOI: [10.1103/PhysRevA.92.051403](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.92.051403). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.92.051403>.
- [43] Wolfgang Demtröder, *Experimentalphysik 3*. 2010.
- [44] *NIST Atomic Spectra Database (version 5.2)*, [Online]. 2015. URL: <http://physics.nist.gov/asd>.

- [45] M. Kitzler und S. Gräfe, *Ultrafast Dynamics Driven by Intense Light Pulses*. 2015.
- [46] T Marchenko, H G Muller, K J Schafer und M J J Vrakking, *Electron angular distributions in near-threshold atomic ionization*. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, **43**,9 (2010), 095601. URL: <http://stacks.iop.org/0953-4075/43/i=9/a=095601>.
- [47] A. Muhlfordt und U. Even, *Autoionizing Rydberg and zero electron kinetic energy states in Ar*. The Journal of Chemical Physics, **103**,11 (1995), 4427–4430. DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.470632>. URL: <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jcp/103/11/10.1063/1.470632>.
- [48] D. S. Belic, Gordon H. Dunn, T. J. Morgan, D. W. Mueller und C. Timmer, *Dielectronic Recombination: A Crossed-Beams Observation and Measurement of Cross Section*. Phys. Rev. Lett., **50**, (5 1983), 339–342. DOI: [10.1103/PhysRevLett.50.339](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.50.339). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.50.339>.
- [49] R. Ali, C. P. Bhalla, C. L. Cocke und M. Stockli, *Dielectronic recombination on heliumlike argon*. Phys. Rev. Lett., **64**, (6 1990), 633–636. DOI: [10.1103/PhysRevLett.64.633](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.64.633). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.64.633>.
- [50] G. Kilgus, J. Berger, P. Blatt, M. Grieser, D. Habs, B. Hochadel, E. Jaeschke, D. Krämer, R. Neumann, G. Neureither, W. Ott, D. Schwalm, M. Steck, R. Stokstad, E. Szmola, A. Wolf, R. Schuch, A. Müller und M. Wagner, *Dielectronic recombination of hydrogenlike oxygen in a heavy-ion storage ring*. Phys. Rev. Lett., **64**, (7 1990), 737–740. DOI: [10.1103/PhysRevLett.64.737](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.64.737). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.64.737>.
- [51] Andrew J. Yench, Kate Ellis und George C. King, *High-resolution threshold photoelectron and photoion spectroscopy of molecular nitrogen in the 15.0–52.7 eV photon energy range*. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, **195**, (2014), 160–173. DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.elspec.2014.07.004>. URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0368204814001522>.
- [52] T. F. Gallagher, *Rydberg Atoms*. 2005.
- [53] Elias Diesen, Ulf Saalman, Martin Richter, Maksim Kunitski, Reinhard Dörner und Jan M. Rost, *Dynamical Characteristics of Rydberg Electrons Released by a Weak Electric Field*. Phys. Rev. Lett., **116**, (14 2016), 143006. DOI: [10.1103/PhysRevLett.116.143006](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.116.143006). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.116.143006>.
- [54] G. M. Lankhuijzen und L. D. Noordam, *Streak-Camera Probing of Rubidium Rydberg Wave Packet Decay in an Electric Field*. Phys. Rev. Lett., **76**, (11 1996), 1784–1787. DOI: [10.1103/PhysRevLett.76.1784](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.76.1784). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.76.1784>.
- [55] Edward William Schlag, *ZEKE Spectroscopy*. Cambridge University Press, 1998.

- [56] J. Dura, N. Camus, A. Thai, A. Britz, M. Hemmer, M. Baudisch, A. Senftleben, C. D. Schroter, J. Ullrich, R. Moshhammer und J. Biegert, *Ionization with low-frequency fields in the tunneling regime*. Sci. Rep., **3**, (2013). Article. URL: <http://dx.doi.org/10.1038/srep02675>.
- [57] Benjamin Wolter, Christoph Lemell, Matthias Baudisch, Michael G. Pullen, Xiao-Min Tong, Michaël Hemmer, Arne Senftleben, Claus Dieter Schröter, Joachim Ullrich, Robert Moshhammer, Jens Biegert und Joachim Burgdörfer, *Formation of very-low-energy states crossing the ionization threshold of argon atoms in strong mid-infrared fields*. Phys. Rev. A, **90**, (6 2014), 063424. DOI: [10.1103/PhysRevA.90.063424](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.90.063424). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.90.063424>.
- [58] U. Saalman, *Korrespondenz*. 2016.
- [59] Howard D. Cohen und U. Fano, *Interference in the Photo-Ionization of Molecules*. Phys. Rev., **150**, (1 1966), 30–33. DOI: [10.1103/PhysRev.150.30](https://doi.org/10.1103/PhysRev.150.30). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.150.30>.
- [60] D. Akoury, K. Kreidi, T. Jahnke, Th. Weber, A. Staudte, M. Schöffler, N. Neumann, J. Titze, L. Ph. H. Schmidt, A. Czasch, O. Jagutzki, R. A. Costa Fraga, R. E. Grisenti, R. Díez Muiño, N. A. Cherepkov, S. K. Semenov, P. Ranitovic, C. L. Cocke, T. Osipov, H. Adaniya, J. C. Thompson, M. H. Prior, A. Belkacem, A. L. Landers, H. Schmidt-Böcking und R. Dörner, *The Simplest Double Slit: Interference and Entanglement in Double Photoionization of H<sub>2</sub>*. Science, **318**,5852 (2007), 949–952. DOI: [10.1126/science.1144959](https://doi.org/10.1126/science.1144959). eprint: [http://www.sciencemag.org/content/318/5852/949/full.pdf](http://www.sciencemag.org/content/318/5852/949.full.pdf). URL: <http://www.sciencemag.org/content/318/5852/949.abstract>.
- [61] XuanYang Lai und C. Figueira de Morisson Faria, *Temporal and spatial interference in molecular above-threshold ionization with elliptically polarized fields*. Phys. Rev. A, **88**, (1 2013), 013406. DOI: [10.1103/PhysRevA.88.013406](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.88.013406). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.88.013406>.
- [62] F. Lindner, M. G. Schätzel, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, F. Krausz, D. B. Milošević, D. Bauer, W. Becker und G. G. Paulus, *Attosecond Double-Slit Experiment*. Phys. Rev. Lett., **95**, (4 2005), 040401. DOI: [10.1103/PhysRevLett.95.040401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.040401). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.95.040401>.
- [63] A. B. Voitkiv, B. Najjari, D. Fischer, A. N. Artemyev und A. Surzhykov, *Young-Type Interference in Projectile-Electron Loss in Energetic Ion-Molecule Collisions*. Phys. Rev. Lett., **106**, (23 2011), 233202. DOI: [10.1103/PhysRevLett.106.233202](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.106.233202). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.106.233202>.
- [64] Marian O. Scully, Berthold-Georg Englert und Herbert Walther, *Quantum optical tests of complementarity*. Nature, **351**,6322 (1991), 111–116. DOI: [10.1038/351111a0](https://doi.org/10.1038/351111a0). URL: <http://dx.doi.org/10.1038/351111a0>.

- [65] M. S. Schöffler, J. Titze, N. Petridis, T. Jahnke, K. Cole, L. Ph. H. Schmidt, A. Czasch, D. Akoury, O. Jagutzki, J. B. Williams, N. A. Cherepkov, S. K. Semenov, C. W. McCurdy, T. N. Rescigno, C. L. Cocke, T. Osipov, S. Lee, M. H. Prior, A. Belkacem, A. L. Landers, H. Schmidt-Böcking, Th. Weber und R. Dörner, *Ultrafast Probing of Core Hole Localization in N<sub>2</sub>*. *Science*, **320**,5878 (2008), 920–923. DOI: [10.1126/science.1154989](https://doi.org/10.1126/science.1154989). eprint: <http://www.sciencemag.org/content/320/5878/920.full.pdf>. URL: <http://www.sciencemag.org/content/320/5878/920.abstract>.
- [66] Peter Sonnentag und Franz Hasselbach, *Measurement of Decoherence of Electron Waves and Visualization of the Quantum-Classical Transition*. *Phys. Rev. Lett.*, **98**, (20 2007), 200402. DOI: [10.1103/PhysRevLett.98.200402](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.200402). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.98.200402>.
- [67] Markus Arndt, Olaf Nairz, Julian Vos-Andreae, Claudia Keller, Gerbrand van der Zouw und Anton Zeilinger, *Wave-particle duality of C<sub>60</sub> molecules*. *Nature*, **401**,6754 (1999), 680–682. DOI: [10.1038/44348](https://doi.org/10.1038/44348). URL: <http://dx.doi.org/10.1038/44348>.
- [68] S. Dürr, T. Nonn und G. Rempe, *Fringe Visibility and Which-Way Information in an Atom Interferometer*. *Phys. Rev. Lett.*, **81**, (26 1998), 5705–5709. DOI: [10.1103/PhysRevLett.81.5705](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.81.5705). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.81.5705>.
- [69] J. Summhammer, G. Badurek, H. Rauch und U. Kischko, *Explicit experimental verification of quantum spin-state superposition*. *Physics Letters A*, **90**,3 (1982), 110–112. DOI: [http://dx.doi.org/10.1016/0375-9601\(82\)90709-5](https://doi.org/10.1016/0375-9601(82)90709-5). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0375960182907095>.
- [70] Martin Richter, Maksim Kunitski, Markus Schöffler, Till Jahnke, Lothar P. H. Schmidt, Min Li, Yunquan Liu und Reinhard Dörner, *Streaking Temporal Double-Slit Interference by an Orthogonal Two-Color Laser Field*. *Phys. Rev. Lett.*, **114**, (14 2015), 143001. DOI: [10.1103/PhysRevLett.114.143001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.143001). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.114.143001>.
- [71] Y. Huismans, A. Rouzée, A. Gijsbertsen, J. H. Jungmann, A. S. Smolkowska, P. S. W. M. Logman, F. Lépine, C. Cauchy, S. Zamith, T. Marchenko, J. M. Bakker, G. Berden, B. Redlich, A. F. G. van der Meer, H. G. Muller, W. Vermin, K. J. Schafer, M. Spanner, M. Yu. Ivanov, O. Smirnova, D. Bauer, S. V. Popruzhenko und M. J. J. Vrakking, *Time-Resolved Holography with Photoelectrons*. *Science*, **331**,6013 (2011), 61–64. DOI: [10.1126/science.1198450](https://doi.org/10.1126/science.1198450).
- [72] Xue-Bin Bian und André D. Bandrauk, *Attosecond Time-Resolved Imaging of Molecular Structure by Photoelectron Holography*. *Phys. Rev. Lett.*, **108**, (26 2012), 263003. DOI: [10.1103/PhysRevLett.108.263003](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.263003). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.108.263003>.

- [73] M. Li, X. Sun, X. Xie, Y. Shao, Y. Deng, C. Wu, Q. Gong und Y. Liu, *Revealing backward rescattering photoelectron interference of molecules in strong infrared laser fields*. Sci. Rep., **5**,8519 (2015). DOI: [10.1038/srep08519](https://doi.org/10.1038/srep08519).
- [74] Xinhua Xie, Stefan Roither, Daniil Kartashov, Emil Persson, Diego G. Arbó, Li Zhang, Stefanie Gräfe, Markus S. Schöffler, Joachim Burgdörfer, Andrius Baltuška und Markus Kitzler, *Attosecond Probe of Valence-Electron Wave Packets by Sub-cycle Sculpted Laser Fields*. Phys. Rev. Lett., **108**, (19 2012), 193004. DOI: [10.1103/PhysRevLett.108.193004](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.193004). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.108.193004>.
- [75] Diego G. Arbó, Kenichi L. Ishikawa, Klaus Schiessl, Emil Persson und Joachim Burgdörfer, *Intracycle and intercycle interferences in above-threshold ionization: The time grating*. Phys. Rev. A, **81**, (2 2010), 021403. DOI: [10.1103/PhysRevA.81.021403](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.81.021403). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.81.021403>.
- [76] Diego G. Arbó, Kenichi L. Ishikawa, Klaus Schiessl, Emil Persson und Joachim Burgdörfer, *Diffraction at a time grating in above-threshold ionization: The influence of the Coulomb potential*. Phys. Rev. A, **82**, (4 2010), 043426. DOI: [10.1103/PhysRevA.82.043426](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.82.043426). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.82.043426>.
- [77] Diego G. Arbó, Stefan Nagele, Xiao-Min Tong, Xinhua Xie, Markus Kitzler und Joachim Burgdörfer, *Interference of electron wave packets in atomic ionization by subcycle sculpted laser pulses*. Phys. Rev. A, **89**, (4 2014), 043414. DOI: [10.1103/PhysRevA.89.043414](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.89.043414). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.89.043414>.
- [78] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer und C. K. Rhodes, *Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases*. J. Opt. Soc. Am. B, **4**,4 (1987), 595–601. DOI: [10.1364/JOSAB.4.000595](https://doi.org/10.1364/JOSAB.4.000595). URL: <http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-4-4-595>.
- [79] Gennady L. Yudin und Misha Yu. Ivanov, *Physics of correlated double ionization of atoms in intense laser fields: Quasistatic tunneling limit*. Phys. Rev. A, **63**, (3 2001), 033404. DOI: [10.1103/PhysRevA.63.033404](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.63.033404). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.63.033404>.
- [80] G. G. Paulus, F. Zacher, H. Walther, A. Lohr, W. Becker und M. Kleber, *Above-Threshold Ionization by an Elliptically Polarized Field: Quantum Tunneling Interferences and Classical Dodging*. Phys. Rev. Lett., **80**, (3 1998), 484–487. DOI: [10.1103/PhysRevLett.80.484](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.80.484). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.80.484>.
- [81] D Comtois, D Zeidler, H Pépin, J C Kieffer, D M Villeneuve und P B Corkum, *Observation of Coulomb focusing in tunnelling ionization of noble gases*. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, **38**,12 (2005), 1923. DOI: [10.](https://doi.org/10.1088/0953-4075/38/12/1923)

- 1088/0953-4075/38/12/008. URL: <http://stacks.iop.org/0953-4075/38/i=12/a=008>.
- [82] Cheng Huang, Qing Liao, Yueming Zhou und Peixiang Lu, *Role of Coulomb focusing on the electron transverse momentum of above-threshold ionization*. Opt. Express, **18**,13 (2010), 14293–14300. DOI: [10.1364/OE.18.014293](https://doi.org/10.1364/OE.18.014293). URL: <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-18-13-14293>.
- [83] H. Eichmann, A. Egbert, S. Nolte, C. Momma, B. Wellegehausen, W. Becker, S. Long und J. K. McIver, *Polarization-dependent high-order two-color mixing*. Phys. Rev. A, **51**, (5 1995), R3414–R3417. DOI: [10.1103/PhysRevA.51.R3414](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.51.R3414). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.51.R3414>.
- [84] Dejan B. Milošević, Wilhelm Becker und Richard Kopold, *Generation of circularly polarized high-order harmonics by two-color coplanar field mixing*. Phys. Rev. A, **61**, (6 2000), 063403. DOI: [10.1103/PhysRevA.61.063403](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.61.063403). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.61.063403>.
- [85] F. Ceccherini, D. Bauer und F. Cornolti, *Harmonic generation by atoms in circularly polarized two-color laser fields with coplanar polarizations and commensurate frequencies*. Phys. Rev. A, **68**, (5 2003), 053402. DOI: [10.1103/PhysRevA.68.053402](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.68.053402). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.68.053402>.
- [86] Dejan B. Milošević und Wilhelm Becker, *Attosecond pulse trains with unusual non-linear polarization*. Phys. Rev. A, **62**, (1 2000), 011403. DOI: [10.1103/PhysRevA.62.011403](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.62.011403). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.62.011403>.
- [87] DB Milosevic, W Becker, R Kopold und W Sandner, *High-harmonic generation by a bichromatic bicircular laser field*. Laser physics, **11**,2 (2001), 165–168.
- [88] A. Fleischer, O. Kfir, T. Diskin, P. Sidorenko und O. Cohen, *Spin angular momentum and tunable polarization in high-harmonic generation*. Nature Photonics, **8**,7 (2014), 543–549.
- [89] Ofer Kfir, Patrik Grychtol, Emrah Turgut, Ronny Knut, Dmitriy Zusin, Dimitar Popmintchev, Tenio Popmintchev, Hans Nembach, Justin M. Shaw, Avner Fleischer, Henry Kapteyn, Margaret Murnane und Oren Cohen, *Generation of bright phase-matched circularly-polarized extreme ultraviolet high harmonics*. Nat Photon, **9**,2 (2015). Article, 99–105. URL: <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2014.293>.
- [90] A. Kramo, E. Hasović, D. B. Milošević und W. Becker, *Above-threshold detachment by a two-color bicircular laser field*. Laser Physics Letters, **4**,4 (2007), 279–286. DOI: [10.1002/lapl.200610119](https://doi.org/10.1002/lapl.200610119). URL: <http://dx.doi.org/10.1002/lapl.200610119>.
- [91] D. Bauer und F. Ceccherini, *Two-color stabilization of atomic hydrogen in circularly polarized laser fields*. Phys. Rev. A, **66**, (5 2002), 053411. DOI: [10.1103/PhysRevA.66.053411](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.66.053411). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.66.053411>.



- [92] Nicolas Douguet, Alexei N. Grum-Grzhimailo, Elena V. Gryzlova, Ekaterina I. Staroselskaya, Joel Venzke und Klaus Bartschat, *Photoelectron angular distributions in bichromatic atomic ionization induced by circularly polarized VUV femtosecond pulses*. Phys. Rev. A, **93**, (3 2016), 033402. DOI: [10.1103/PhysRevA.93.033402](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.93.033402). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.93.033402>.
- [93] Christopher A. Mancuso, Daniel D. Hickstein, Patrik Grychtol, Ronny Knut, Ofer Kfir, Xiao-Min Tong, Franklin Dollar, Dmitriy Zusin, Maithreyi Gopalakrishnan, Christian Gentry, Emrah Turgut, Jennifer L. Ellis, Ming-Chang Chen, Avner Fleischer, Oren Cohen, Henry C. Kapteyn und Margaret M. Murnane, *Strong-field ionization with two-color circularly polarized laser fields*. Phys. Rev. A, **91**, (3 2015), 031402. DOI: [10.1103/PhysRevA.91.031402](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.91.031402). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.91.031402>.
- [94] N B Delone und Vladimir P Krainov, *AC Stark shift of atomic energy levels*. Physics-Uspekhi, **42**,7 (1999), 669. URL: <http://stacks.iop.org/1063-7869/42/i=7/a=R03>.
- [95] Birte Ulrich, “Argon- und Neon-Dimere und Trimere in intensiven Laserfeldern”. Dissertation. Goethe-Uni Frankfurt, Institut für Kernphysik, 2011. URL: <http://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/>.
- [96] S. Heck, “*Strong field ionization in circular two color fields*”. Bachelorarbeit. Goethe-Uni Frankfurt, Institut für Kernphysik, 2015. URL: <http://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/>.

## Mein besonderer Dank gilt...

- *Reinhard* für die Aufnahme in eine Arbeitsgruppe, in der ich mich jederzeit wohl fühlte und immer Hilfe fand. Deine spannende „Atomphysik“-Vorlesung hat mich sofort gepackt und mir war klar, dass ich mein Wissen über dieses Thema vertiefen will. Außerdem ist es wirklich etwas Besonderes, dass deine Tür immer offen steht und ich mit jedem Anliegen bei dir vorbei kommen konnte.
- *Maksim* für deine permanente Hilfe in allen Belangen und die schöne Zeit als Büronachbar. Mein physikalisches Wissen und experimentelles Können haben sich durch die Arbeit mit dir stark verbessert. Auch wenn ich immer noch nicht die Photos von unserem Aufenthalt in China von dir bekommen habe ;-), werde ich die Zeit mit dir am IKF immer in sehr guter Erinnerung behalten.
- *Alexander* für die gute Laune, die ich meistens bei den Gesprächen mit dir als Büronachbar bekommen habe.
- *Till* für das super schnelle Beantworten aller möglichen Fragen zu lmf2root. Du warst auch nicht aus der Ruhe zu bringen, wenn die Antwort eigentlich nur „RTFM“ war.
- *Jian Wu* for the motivating words while aligning a laser beam. (One of my first experimental tasks was to collimate an invisible THz-beam with a parabolic mirror...)
- *Mark Thomson* für das Erklären der Laserdetails und die coolen Pausengespräche.
- *Markus S.* und *Lothar* für eure Hilfe beim Spektrometerbau und den Signaloptimierungen. Damit wurde das Experiment überhaupt erst möglich.
- *Saijoscha* für die geduldige Suche nach der besten Zirkularität.
- *Sebastian*, der wahrscheinlich schon bald den Traum vom perfekten CRFC-Aufbau realisiert hat.
- *Gregor*, der immer weitergeholfen hat, wenn irgendwas am Experiment fehlte.
- *der ganzen Arbeitsgruppe*. Die angenehme Atmosphäre hat mich immer wieder gerne ins IKF kommen lassen. Nachdem ich mich auch an die Mensazeiten (11:45!!) gewöhnt hatte, kann ich mir wirklich keine bessere Arbeitsgruppe vorstellen.

- *meiner Familie*. Euch habe ich am meisten zu verdanken. Wegen eurer Unterstützung bin ich überhaupt erst auf die Idee gekommen, es mit der Physik aufnehmen zu können. Außerdem kann man nun sagen: Euer Einsatz während meiner zwischenzeitlich schwierigen schulischen Zeiten hat sich gelohnt!
- *Asja*. Du hast dir immer geduldig die Berichte über die Höhen und Tiefen meines Doktorandenalltags angehört.

# Lebenslauf

## Martin Clemens Richter

Geburtstag	23.12.1986
Geburtsort	Dresden
Nationalität	Deutsch
Familienstand	ledig



## Bildungsweg

09.06.2006	Abitur, Note: 1,9	Gymnasium am Mosbacher Berg, Wiesbaden
15.09.2010	Bachelor Physik, Note: 1,8	Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main
10.09.2012	Master Physik, Note: 1,1	Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main
01.02.2013	Beginn Promotions- studium Physik	Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main

## Forschungsaufenthalte

04/2010	4 Monate	Kansas State University, Kansas, USA
08/2013	3 Wochen	Lawrence Berkeley Nat'l Lab, Kalifornien, USA
11/2014	2 Wochen	Deutsches Elektronen-Synchrotron, Hamburg

## Konferenztelnahmen

03/2012	DPG-Frühjahrstagung, Stuttgart
11/2014	International Workshop on ATOMIC PHYSICS, Dresden
12/2014	ICOMP 13, Shanghai, China
07/2015	ICPEAC 2015, Toledo, Spanien
11/2015	QUTIF, Hannover

## Akademische Lehrer

Prof. Dr. Reinhard Dörner  
Prof. Dr. Joachim A. Maruhn  
Prof. Dr. Hartmut Roskos  
Prof. Dr. Walter Hofstetter  
Prof. Dr. Roser Valenti  
PD Dr. Till Jahnke  
PD Dr. Robert Grisenti  
Prof. Dr. Horst Schmidt-Böcking  
Dr. Zenghu Chang  
Prof. Dr. Thomas Boller  
Prof. Dr. Ulrich Ratzinger  
Prof. Dr. Joachim Stroth  
Dr. Mark Thomson  
Prof. Dr. André Fuhrmann