Doppelionisation in starken Feldern mit einer Wellenlänge von 400 nm

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften

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

von
Kevin Henrichs
aus Halle (Saale)

Frankfurt 2016
(D 30)

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: 10.3.2017

Inhaltsverzeichnis

1. Einführung **1**

2. Theoretische Grundlagen **3**
2.1. LASER . . . 3
2.2. Atome in starken Laserfeldern . . . 5
2.2.1. Strong Field Approximation . . . 5
2.2.2. Das ponderomotorische Potential/Die ponderomotorische Energie . . . 6
2.2.3. Multiphotonen- und Tunnelionisation . . . 8
2.2.4. Der Keldysh-Parameter . . . 12
2.2.5. Ionisationsraten (ADK) . . . 13
2.2.6. Fokusgeometrie und Focal Averaging . . . 14
2.2.7. Freeman-Resonanzen . . . 15
2.3. Doppelionisation . . . 17
2.3.1. Nichtsequentielle Doppelionisation . . . 17
2.3.2. Energieerhaltung in der Doppelionisation . . . 27
2.3.3. Elektronenkorrelation in der Doppelionisation . . . 29
2.3.4. Korrelationsmaß nach Zielinski et al. . . . 30
2.3.5. Spezialfall: Helium . . . 31
2.4. Bereits durchgeführte Experimente . . . 33

3. Experimenteller Aufbau **37**
3.1. Übersicht . . . 37
3.2. Laser . . . 38
3.2.1. Oszillator . . . 39
3.2.2. Verstärker . . . 45
3.2.3. SHG im BBO . . . 46
3.2.4. Laserfokus in der Kammer . . . 48
3.3. COLTRIMS-Kammer . . . 51
3.3.1. Überblick . . . 51
3.3.2. Vakuumsystem . . . 52
3.3.3. Präparation des Targets - der Jet . . . 55
3.3.4. Messprinzip . . . 63
3.3.5. Spektrometerdetails . . . 67

4. Auswertungstechnik **70**
4.1. Flugzeitberechnung . . . 70

4.2. Berechnung des Auftrefforts . . . 72
4.3. Impulsberechnung . . . 73
4.3.1. Ionen . . . 73
4.3.2. Elektronen . . . 74
4.4. Parameterbestimmung - Kalibrierung mit IPA . . . 75
4.4.1. Korrekturen . . . 76
4.5. Analyse und Untergrundunterdrückung . . . 81
4.5.1. Ionenauswahl . . . 82
4.5.2. Elektronenauswahl . . . 84
4.5.3. Effektive Impulsauflösung . . . 85

5. Doppelionisation mit 400 nm**-Laserpulsen** **86**
5.1. Untersuchungen an Helium . . . 86
5.1.1. Kalibrierungen . . . 87
5.1.2. He^{2+}/He^{+}-Verhältnis . . . 90
5.1.3. Einfachionisation . . . 92
5.1.4. Doppelionisation . . . 95
5.1.5. Der Einfluss der Auswahlregeln . . . 108
5.1.6. Korrelationsmaß . . . 117
5.1.7. Winkelverteilungen . . . 120
5.1.8. Modellbetrachtung . . . 125
5.2. Untersuchungen an Neon . . . 127
5.2.1. Ne^{2+}/Ne^{+}-Verhältnis . . . 128
5.2.2. Einfachionisation . . . 130
5.2.3. Doppelionisation . . . 132
5.2.4. Modellbetrachtung . . . 138
5.2.5. Der Einfluss der Auswahlregeln . . . 139

6. Zusammenfassung und Ausblick **143**
6.1. Zusammenfassung . . . 143
6.2. Ausblick . . . 146

A. Anhang - Experimentelle Parameter **147**

Danksagung **159**

Atomare Einheiten

In der vorliegenden Arbeit wird an vielen Stellen das System der atomaren Einheiten verwendet. Dieses fußt auf den charakteristischen Skalen, die sich bei der Beschreibung von Atomen ergeben. Dabei wird jede SI-Einheit in „a.u.“ umgewandelt, wodurch diese universale Einheit mehrdeutig wird und unterschiedliche Umrechnungsfaktoren besitzt (je nachdem, welche Größe betrachtet wird). In der folgenden Tabelle sind daher für verschiedene Größen die Werte in SI-Einheiten angegeben, die 1 $a.u.$ entsprechen.

Einheit	Formel	SI Einheiten
Zeit	t	$2,42 \cdot 10^{-17}\ s$
Masse	m	$9,11 \cdot 10^{-31}\ kg$
Ladung	q	$1,6 \cdot 10^{-19}\ C$
Länge	s	$5,29 \cdot 10^{-11}\ m$
Geschwindigkeit	v	$2,19 \cdot 10^{6}\ m/s$
Impuls	p	$1,99 \cdot 10^{-25}\ kgm/s$
Drehimpuls	L	$1,05 \cdot 10^{-34}\ kgm^2/s$
Frequenz	ν	$4,13 \cdot 10^{16}\ Hz$
Energie	W	$4,36 \cdot 10^{-18}\ kgm^2/s^2$=$27,212\ eV$
Elektrisches Feld	E	$5,14 \cdot 10^{11}\ V/m$
Magnetisches Feld	B	$2,35 \cdot 10^{5}\ kgA[T]$
Intensität	I	$3,51 \cdot 10^{16}\ W/cm^2$

Konstante	Formel	Atomare Einheiten
Elementarladung	e	1 $a.u.$
Elektronenmasse	m_e	1 $a.u.$
Protonenmasse	m_p	$1836,1528\ a.u.$
Lichtgeschwindigkeit	c_0	137 $a.u.$
Plancksches Wirkumsquantum	h	$2\pi\ a.u.$

1. Einführung

Der Kern der Wissenschaft im Allgemeinen und der Physik im Besonderen ist, viele Beobachtungen auf möglichst wenige grundlegende Gesetze zurückzuführen. Um diese Gesetze im Experiment zu erforschen, ist es üblich, sie zunächst isoliert voneinander zu untersuchen. Wenn genug über einzelne Regeln bekannt ist, kann im Folgenden deren gemeinsames Wirken betrachtet werden. Das ist auch notwendig, denn nur die wenigsten Prozesse in der Welt lassen sich nach heutigem Stand mit einem einzigen Gesetz erklären. Ebenso verhält es sich bei der Ionisation eines Atoms durch Licht. Die Komplexität dieses Vorgangs wird in dieser Arbeit - verglichen mit Experimenten in der Vergangenheit - erhöht und das Zusammenspiel isoliert gut verstandener Effekte untersucht. Vor diesem Hintergrund soll die folgende Einführung in das physikalische Thema verstanden werden.

Von (Einfach-)Ionisation spricht man, wenn aus einem neutralen Atom durch Entfernung eines Elektrons ein positiv geladenes Ion erzeugt wird. Die dafür benötigte Energie kann in vielfältiger Weise bereitgestellt werden - beispielsweise durch Licht. Der Fokus des wissenschaftlichen Interesses liegt in diesem Fall auf der Licht-Atom-Wechselwirkung. Hierbei stellt die Ionisation durch ein einzelnes Photon den einfachsten Fall dar, da nur eine einzige Wechselwirkung stattfindet. Die Energie dieses Photons kann jedoch so gewählt werden, dass anschließend weitere Prozesse ablaufen. Unter anderem ist es möglich, durch Wechselwirkung eines Photons - falls dieses genügend Energie bereitstellt - mit einem Atom eine Emission zweier Elektronen herbeizuführen (Doppelionisation).
Spannender und komplexer erweisen sich Fälle, in denen es zur Wechselwirkungen eines Atoms mit mehreren Photonen kommt. Experimentell drückt sich dieser Wechsel von der Einphotonionisation zur Ionisation durch mehrere Photonen in einem Wechsel der Verwendung von Synchrotron- hin zu Laser-Strahlung aus. Im Wellenbild ist das gleichbedeutend mit der Erhöhung der Feldstärke der elektromagnetischen Welle um mehrere Größenordnungen. Während der Einphotonfall störungstheoretisch behandelt werden kann, ist bei den hohen Feldstärken des Lasers ein anderer theoretischer Zugang nötig. Somit bietet schon die Einfachionisation im Starkfeldregime ein grundsätzlich neues Forschungsfeld, welches experimentell erst innerhalb der letzten Jahrzehnte durch die Entwicklung neuer Lasersysteme eröffnet wurde.
Der Einfluss mehrerer Photonen lässt auch nach der Ionisation eine Wechselwirkung des freien Elektrons mit dem Lichtfeld zu. Dadurch kann das Elektron unter anderem zum Ion zurückkehren und mit diesem wechselwirken - beispielsweise Energie austauschen. Neben diversen anderen Effekten ist hierdurch eine weitere Ionisation des Atoms möglich, die als nichtsequentielle Doppelionisation bezeichnet wird. In diesem speziellen - sehr seltenen - Fall können folglich simultan die Wechselwirkung des Atoms mit mehreren Photonen

und die Elektron-Elektron Wechselwirkung studiert werden. Dadurch erweist sich nichtsequentielle Doppelionisation im Mehrphotonenfall als wissenschaftlich äußerst interessantes Forschungsobjekt.
Um diesen noch kaum untersuchten Vorgang systematisch zu erforschen, ist es sinnvoll, zunächst das denkbar einfachste System zu wählen. Das ist im vorliegenden Fall das neutrale Helium-Atom, da es ausschließlich die beiden zur Doppelionisation benötigten Elektronen besitzt und vereinfacht als Dreikörperproblem (Ion und beide Elektronen) relativ gut behandelbar ist. Ausgehend davon können dann weitere komplexere Systeme mit mehr als zwei Elektronen untersucht werden. In dieser Arbeit fiel die Wahl auf Neon, dem nächstschwereren Edelgas.
Mit dieser Herangehensweise soll eine Vielzahl von grundlegenden Fragen angegangen werden. Welche komplizierten Abläufe gehen - abhängig von der Intensität des Laserlichts - während der vielen Wechselwirkungen zwischen Licht und den Elektronen vor sich? Inwiefern können diese klassisch erklärt werden oder benötigen sie quantenmechanische Ansätze? Zur letzten Frage gesellen sich die sogenannten Auswahlregeln der Quantenmechanik: Für den Einphotonfall ist bekannt, dass das Pauli-Prinzip im Zusammenspiel mit grundlegenden Regeln der Quantenmechanik dazu führt, dass klassisch erklärbare Winkelverteilungen der in der Doppelionisation emittierten Elektronen in bestimmten Teilen des Phasenraums massiv unterdrückt werden. Somit kommt es offenbar zu einem Wechselspiel zwischen klassischer Physik und Quantenmechanik. Das ist ebenso für den Mehrphotonenfall vorhergesagt und bisher nicht experimentell beobachtet worden.
Diese und weitere aktuelle Fragen sind Thema der vorliegenden Arbeit. Zu deren Beantwortung wird ein COLTRIMS (Cold Target Recoil Ion Momemtum Spectroscopy)-System genutzt, welches nach einem Ionisationsereignis koinzident alle beteiligten geladenen Teilchen nachweist. Dabei stehen jeweils für jedes Teilchen die vollständigen Informationen über alle Impulskomponenten zur Verfügung, wodurch auch beispielsweise Energien und Winkelverteilungen betrachtet werden können.

2. Theoretische Grundlagen

Dieses Kapitel beinhaltet eine Einführung in die physikalischen Grundlagen, die für das Verständnis der in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Experimente notwendig sind. Zunächst wird auf die Eigenschaften des Laserlichts eingegangen, danach auf die Wechselwirkung von Atomen mit starken Laserfeldern im Allgemeinen und anschließend werden detailliert Prozesse beschrieben, die ultrakurze Laserpulse in Atomen auslösen.
Am Ende soll ein möglichst umfassendes Bild der korrelierten Doppelionisation von Edelgasatomen in einem starken Laserfeld entstehen.

2.1. LASER

Ein LASER (kurz für „Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation“) liefert monochromatisches kohärentes Licht hoher Intensität. Wie aus den Grundvorlesungen bekannt ist, kann Licht als Welle und als Teilchen interpretiert werden.
Mit Hilfe der Maxwell'schen Gleichungen können wir Licht einerseits als Welle beschreiben (siehe u.a. (Hen13)). Der magnetische Feldanteil kann bei den verwendeten Intensitäten wegen der kleinen Geschwindigkeiten der Elektronen im Feld vernachlässigt werden[1]. Beschränken wir uns daher auf den elektrischen Teil der Welle. Dann erhalten wir

$$\vec{E}(\vec{r},t) = \vec{E_A}(t) \cdot e^{i(\omega t \pm \vec{k}\vec{r})}, \tag{2.1}$$

bzw. an festem Ort r

$$\vec{E}(t) = \vec{E_A}(t) \cdot cos(\omega t + \phi_{ce}), \tag{2.2}$$

wobei ω die Kreisfrequenz ist mit $\lambda = 2\pi c_0/\omega$ (c_0 ist die Vakuumlichtgeschwindigkeit). Die Carrier-Envelope Phase (CEP) ϕ_{ce} gibt den Phasenunterschied zwischen Trägerwelle[2] und Amplitudenfunktion an und ist im Allgemeinen nicht konstant. E_A ist die Amplitude oder Einhüllende des Feldes und für einen Dauerstrich-Laser (auch CW-Laser für engl. „constant wave“) eine Konstante, bei gepulsten Lasern aber von der Zeit abhängig: $E_A(t)$. Einen Puls mit der Einhüllenden

$$E_A(t) = E_{peak} \cdot e^{-\frac{t^2}{2\sigma^2}} \tag{2.3}$$

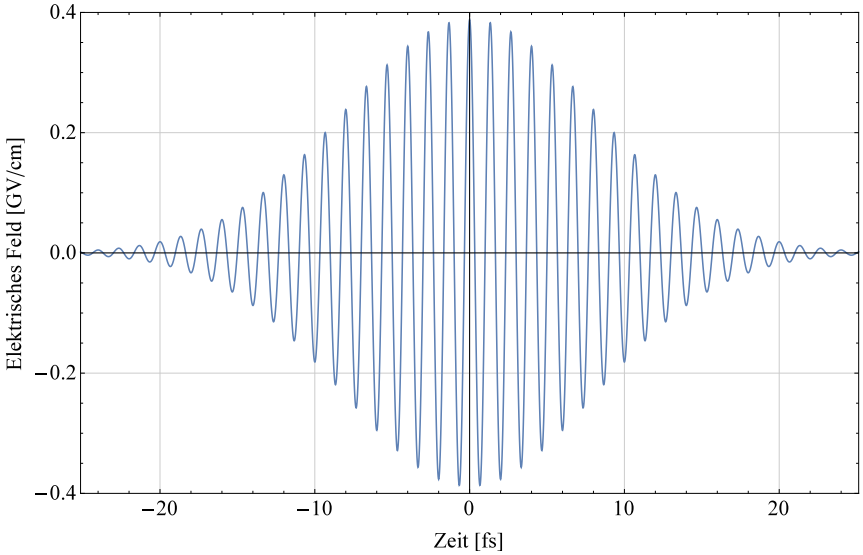


Abbildung 2.1.: Gauß'scher Laserpuls mit Carrier-Envelope-Phase $\phi_{CE} = 0$ rad, Pulsdauer $\tau = 45$ fs und Wellenlänge $\lambda = 400$ nm. Die elektrische Feldstärke entspricht einer Peakintensität von $I_{peak} = 1 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$.

nennen wir einen Gauß'schen Puls. Aus der Standardabweichung der Einhüllenden σ können wir außerdem die Pulsdauer $\tau = \sigma \cdot \sqrt{8 \cdot ln(2)}$ extrahieren (DR06), die typischerweise mehrere 10 Femtosekunden beträgt. In Abb. 2.1 ist ein typischer Gauß'scher Laserpuls dargestellt, wie er in dieser Arbeit genutzt wurde.
Andererseits stellen wir uns das Laserlicht im Teilchenbild als einen Strom von Photonen vor, die mit der Energie $E_{ph} = h \cdot \nu$ in die gleiche Richtung propagieren. h ist hierbei die Planck-Konstante und ν die Frequenz des Lichts. Für gepulste Laser ist der Strom dieser Photonen zeitlich nicht konstant, sondern erreicht einen festen Ort in sehr kurzen Bündeln.

Intensität

Die Intensität ist eine wichtige Kennzahl des Lasers. Sie wird üblicherweise in $[W/cm^2]$ angegeben und gibt somit den Energiestrom pro Zeit und pro Fläche an. Bei einem CW-Laser bleibt sie über eine Wellenlänge gemittelt zeitlich nahezu konstant. Um jedoch höhere Intensitäten zu erzeugen, wird die Energie des Lasers in zeitlich kurze Pulse gebündelt und örtlich fokussiert. Bei gepulsten Lasern ist es daher sinnvoll, eine maximale Intensität anzugeben, die Peakintensität:

$$I_{peak} = c\epsilon_0 \frac{E_{peak}^2}{2}. \tag{2.4}$$

[1] $\frac{|F_{Lorentz}|}{|F_{elektrisch}|} = \frac{qv_\perp|B|}{q|E|} = \frac{v_\perp\sqrt{\epsilon_0\mu_0}|E|}{|E|} = \frac{v_\perp}{c}$
[2] Die periodische Grundschwingung der elektromagnetischen Welle wird Trägerwelle genannt.

In Abb. 2.1 wird I_{peak} bei $t = 0$ erreicht.

2.2. Atome in starken Laserfeldern

Grundlegend für die vorliegende Arbeit ist das Verständnis der Wechselwirkung von Atomen mit dem Feld des Lasers. Da die im Folgenden verwendeten Felder besonders stark sind, lässt sich dieses Problem im theoretischen Modell nicht als kleine, zeitabhängige Störung des Atompotentials auffassen. Die Störungstheorie, wie sie beispielsweise bei der Ionisation durch Synchrotronstrahlung Anwendung findet, kann also so nicht mehr verwendet werden (Pit15). Stattdessen hat sich die entsprechend benannte „Strong Field Approximation“ (SFA) als erfolgreich erwiesen. Ein zusammenfassender Artikel hierfür ist in (ISS05) zu finden, an dem sich diese Ausführung orientiert. Außerdem gibt es ausführliche Betrachtungen auch in (Scr11) sowie in (BGK$^+$02).

2.2.1. Strong Field Approximation

Bei starken Feldern kann das Atompotential als kleine Störung des Laserfeldes interpretiert werden. Mithilfe dieses Ansatzes ist es unter anderem den Vorreitern Keldysh, Reiss und Faisal gelungen, eine Theorie zu entwickeln, die zwar einige Schwächen hat, jedoch die grundlegenden Beobachtungen gut reproduziert (Kel65) (Rei80) (Fai73).
Beginnen wir mit der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung (in atomaren Einheiten):

$$i\frac{\delta}{\delta t}\left|\Psi\right\rangle = \hat{H}(t)\left|\Psi\right\rangle, \tag{2.5}$$

deren formale Lösung für den Endzustand sich aus dem Produkt aus Zeitentwicklungsoperator und Anfangszustand zusammensetzt: $\left|\Psi(t)\right\rangle = e^{-i\int_0^t \hat{H}(t')dt'}\left|\Psi_i\right\rangle$. Der in Glg. 2.5 enthaltene Hamilton-Operator $\hat{H}(t)$ wird nun in die Summe aus einem feldfreien Teil $\hat{H}_0$ und einem Teil $\hat{V}_L(t)$, der die Wechselwirkung mit dem angelegten Feld beschreibt, zerlegt: $\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + \hat{V}_L(t)$. Wir verwenden $\hat{V}_L(t) = -\vec{d}\vec{E}(t)$, wobei $\vec{d} = e \cdot \vec{r}$ das Dipolmoment des Atoms und $\vec{E}$ die elektrische Feldstärke des angelegten Laserfeldes sind[3]. Eine Projektion der formalen Lösung auf einen beliebigen Endzustand liefert nun die zeitabhängige Amplitude $a(t)$ der Besetzung dieses Endzustandes. Beispielsweise lässt sich diese Amplitude für einen Endzustand mit der Geschwindigkeit v zum Zeitpunkt t folgendermaßen darstellen:

$$a_v(t) = -i\int_0^t dt' \left\langle v\right| [e^{-i\int_{t'}^t \hat{H}(t'')dt''}] V_L(t') [e^{-i\int_0^{t'} \hat{H}_0 dt''}] \left|\Psi_i\right\rangle. \tag{2.6}$$

[3]Die Betrachtung funktioniert im Rahmen der Dipol-Näherung: Die Wellenlänge des Laserlichts ist deutlich größer als die Ausdehnung des Atoms, weshalb die durch das elektrische Feld wirkende Kraft dort überall näherungsweise gleich ist.

Aus diesem eher kompliziert anmutenden Ausdruck können wir aber viel physikalisches Verständnis ableiten. Das System, repräsentiert durch den Anfangszustand $|\Psi_i\rangle$, wird zunächst mit dem feldfreien Operator propagiert und durch das Feld bis zum Zeitpunkt t' nicht beeinflusst. Zum Zeitpunkt t' folgt die Wechselwirkung mit dem äußeren Feld durch Anwendung des Operators $\hat{V}_L(t')$. Erst danach wirkt der vollständige Hamiltonoperator $\hat{H}(t)$ auf das System. Da der Zeitpunkt der Wechselwirkung beliebig ist, muss über alle Fälle und damit über alle t' integriert werden.
Der entscheidende Schritt in der SFA ist nun, den vollständigen Hamiltonoperator nach der Wechselwirkung ausschließlich durch den des angelegten Feldes zu ersetzen, da bei starken Feldern das bindende Potential vernachlässigbar klein ist. Dadurch wird das Elektron nach der Wechselwirkung als quasi-freies Teilchen behandelt und wir erhalten den Volkov-Propagator $e^{-i\int_{t'}^{t}\hat{H}_F dt''}$, wobei $\hat{H}_F = \hat{H} - \hat{V}_A$ gilt und $\hat{V}_A$ das bindende Potential des Systems ist. Nun können wir Glg. 2.6 wie folgt schreiben:

$$\Psi(\vec{v},t) = -i\int_0^t dt' e^{-i(1/2)\int_{t'}^{t}[\vec{v}+\vec{A}(t'')-\vec{A}(t)]^2 dt''} \langle \vec{v}+\vec{A}(t')-\vec{A}(t)|\, V_L(t')\,|\Psi_i\rangle\, e^{iI_p t'}. \qquad (2.7)$$

I_p ist das Ionisationspotential des Grundzustandes, $\vec{A}$ das Vektorpotential des elektrischen Feldes. Die Zeit vor der Wechselwirkung mit dem Feld resultiert also in einem Phasenfaktor $e^{iI_p t'}$. Zum Zeitpunkt der Wechselwirkung wird das Elektron mit der Geschwindigkeit[4] $\vec{v}(t_{ion}) = \vec{v}_0 - \vec{A}(t_{ion})$ in das Kontinuum gehoben und danach vom Laserfeld beschleunigt. Hierbei entsteht ein neuer Phasenfaktor, der dem Integral der instantanen Energie des Elektrons im Feld zwischen Ionisations- und Messzeitpunkt entspricht.
Die SFA bezieht die Rechtfertigung ihrer Näherung nicht nur daraus, dass der wirkende Hamiltonoperator nach der Ionisation mathematisch einfacher zu handhaben ist, sondern auch aus dem Fakt, dass der Volkov-Propagator für ein freies Elektron in einem äußeren oszillierenden Feld analytisch bekannt ist. Dieser genäherte Zustand eines freien Elektrons wird daher oft auch als Volkov-Zustand bezeichnet.

2.2.2. Das ponderomotorische Potential/Die ponderomotorische Energie

Im Feld des Lasers wird das quasi-freie Elektron nur durch dieses beschleunigt. Da das Feld periodisch oszilliert, resultiert eine ebenso oszillierende Trajektorie des Elektrons. Dieser „Zitterbewegung“ im Feld können wir eine mittlere Energie zuordnen. Aber zunächst betrachten wir die auf das freie Elektron wirkende Kraft F_{el}

$$\vec{F}_{el} = m_e\frac{d\vec{v}}{dt} = e\vec{E}(t). \qquad (2.8)$$

[4] $\vec{P} = \vec{v}(t) - \vec{A}(t)$ ist der kanonische Impuls in atomaren Einheiten und eine Erhaltungsgröße (siehe auch Kap. 2.2.2). Also muss $\vec{v}(t) - \vec{A}(t) = \vec{v}(t') - \vec{A}(t')$ gelten, wobei t' der Zeitpunkt der Ionisation und t jeder beliebige Zeitpunkt danach sind. Umstellen liefert die im Text gegebene Formel.

Durch Integration erhalten wir (mit Glg. 2.2 und $\int \vec{E}(t)\ dt = -\vec{A}(t)$)

$$m_e\vec{v}(t) = e\int_{t_0}^{t} E_A(t') \cdot cos(\omega t')dt' = e\vec{A}(t_0) - e\vec{A}(t). \tag{2.9}$$

Somit können wir definieren (BGK$^+$02):

$$m_e\vec{v}(t) = e(\vec{A}(t_0) - \vec{A}(t)) \coloneqq \vec{p} - e\vec{A}(t). \tag{2.10}$$

$\vec{p}$ ist der Drift-Impuls, der dem gemessenen Impuls am Detektor entspricht[5]. Der letzte Term oszilliert mit dem Vektorpotential und ist nicht konstant. Durch Mittelung dieser Geschwindigkeit über eine Periode T des Lasers hinweg erhalten wir für die Energie W

$$W = \frac{m_e}{2} < \vec{v}(t)^2 >_T = \frac{\vec{p}^2}{2m_e} + \frac{e^2}{2m_e} < \vec{A}(t)^2 >_T \coloneqq W_{Drift} + U_p \tag{2.11}$$

und identifizieren den letzten Term als die mittlere Energie der periodischen Bewegung im Feld - das ponderomotorische Potential. Dieses ist (BGK$^+$02) (Ran05)

$$U_p = \frac{E_A^2}{4\omega_L^2} = \frac{I}{\omega_L^2}\frac{e^2}{2c\epsilon_0 m}. \tag{2.12}$$

Interpretiert werden kann U_p als die Verschiebung des Kontinuums durch den AC-Stark-Effekt[6]. Das ponderomotorische Potential als eine zusätzliche Energie eines Elektrons im Kontinuum muss folglich für die Ionisation aus dem Grundzustand zusätzlich aufgebracht werden. Dadurch manifestiert sich U_p im Experiment als eine intensitätsabhängige Erhöhung des effektiven Ionisationspotentials ($I_{eff} = I_p + U_p$) bzw. eine Verschiebung des Elektronenenergiespektrums hin zu kleineren Energien. Eine einfache Umrechnung von ponderomotorischem Potential in die entsprechende Intensität des Lasers ist mit

$$U_p[eV] = 0,09337\ I[W/cm^2]\lambda^2[m] \tag{2.13}$$

[5]Für Tunnelionisation hängt der Drift-Impuls nur vom Vektorpotential zum Zeitpunkt des Tunnelns ab, da das Elektron direkt nach dem Tunneln eine Startgeschwindigkeit von $v_{Start} = 0$ aufweist.

[6]Die AC-Stark-Verschiebung ist eine Erhöhung der Energieniveaus von Elektronen in einem Atom durch ein von außen angelegtes elektrisches Wechselfeld. Schwächer gebundene Elektronen werden hierbei stärker verschoben als stark gebundene. (Mah07). Für den Grundzustand ist diese Verschiebung vernachlässigbar klein.

gegeben.
U_p ist demnach über die Mittelung einer oszillierenden Bewegung definiert. Diese Mittelung für den gesamten Puls zu verwenden ist gerechtfertigt, wenn es sich um einen langen Puls handelt, dessen Einhüllende sich - verglichen mit der Periodendauer der Trägerwelle - nur langsam verändert. Bei ultrakurzen Laserpulsen, wie sie in der vorliegenden Arbeit verwendet werden, ist diese Näherung nicht mehr anwendbar. Vielmehr muss für jeden einzelnen Zyklus der Trägerwelle ein über diesen gemittelter instantaner Wert für U_p bestimmt werden (DPGG$^+$16). Daraus ergeben sich verschiedene Elektronenenergiewerte, je nachdem, in welchem Zyklus das Elektron emittiert wurde. Das zentrale Maximum des Pulses trägt dabei am stärksten zur Ionisationsrate bei und liefert die niedrigsten Kontinuumsenergien der Elektronen. Ionisation bei den danebenliegenden Maxima trägt wegen der fallenden Intensität exponentiell weniger zur Rate bei, sorgt aber für höhere Elektronenenergien, da das instantane U_p niedriger ist.

2.2.3. Multiphotonen- und Tunnelionisation

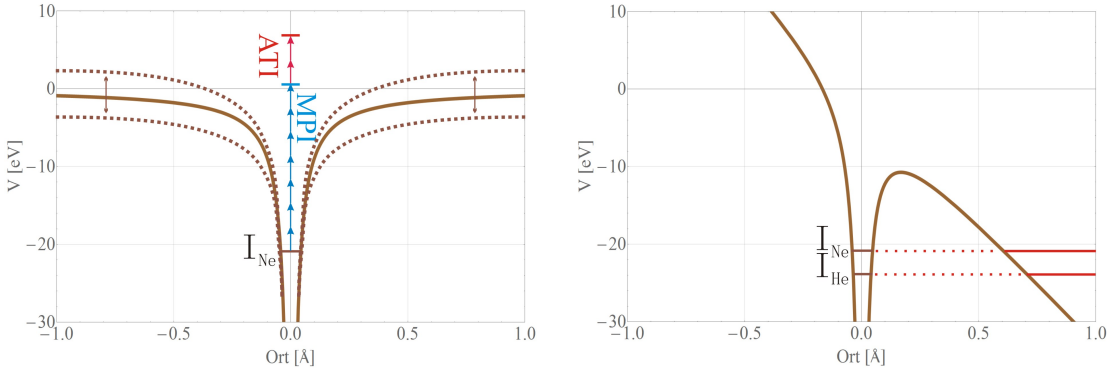


Abbildung 2.2.: Links: Multiphotonen-Ionisation (MPI, blau) aus dem Grundzustand von Neon ($I_{Ne} = 21,56\ eV$). Insgesamt sieben $3,14\ eV$-Photonen sind ausreichend, um das (nicht AC-Stark-verschobene) Ionisationspotential zu überwinden. Werden mehr Photonen als nötig absorbiert, spricht man von Above-Threshold-Ionisation (ATI, rot). Rechts: Tunnelionisation. Zur Anschauung sind die Ionisationspotentiale von Helium ($I_{He} = 24,59\ eV$) und Neon eingezeichnet. Das äußere Feld des Lasers ($E = 20\ GV/m$) verbiegt das Atompotential, sodass aus dem Grundzustand eine endliche Wahrscheinlichkeit zum Tunneln besteht (rote, gepunktete Linie).

In Kap. 2.2.1 haben wir den Ionisationsvorgang noch abstrakt als Anwendung des Operators $\hat{V}_L$ behandelt. Wie läuft dieser Vorgang aber anschaulich ab?
Wie schon in Kapitel 2.1 erwähnt, sind zwei verschiedene Beschreibungen von Licht möglich: als Welle oder als Teilchen. Eine ähnliche Unterscheidung findet auch bei den Mechanismen

der Ionisation durch starke Felder statt, welche in Abb. 2.2 dargestellt sind.
In der quantenmechanischen Beschreibung, welche am ehesten dem Teilchenbild entspricht (links), wird das Elektron durch Wechselwirkung mit mehreren Photonen gleichzeitig ionisiert. In diesem Modell überlagert das Laserfeld das Coulomb-Potential

$$V_C(r) = -\frac{q_e}{4\pi\epsilon_0}\frac{1}{|r|}, \tag{2.14}$$

welches auf das äußerste gebundene Elektron wirkt, signifikant. Der Potentialberg „wackelt“ dadurch periodisch mit der Frequenz des Lasers. Somit kommt es zur Wechselwirkung des Elektrons mit dem Gesamtpotential aus Laserfeld und Atomkern. Die nötige Energie zur Ionisation kann es jedoch nur in Vielfachen der Photonenenergie vom Feld erhalten. Dieser Fall ist vereinfacht im linken Teil von Abb. 2.2 gezeigt und wird Multiphotonen-Ionisation (MPI) genannt. Es wird beobachtet, dass auch mehr Photonen absorbiert werden können, als für die Ionisation nötig sind. Das führt zu höheren kinetischen Energien der Kontinuumselektronen und es entstehen mehrere Maxima im Energiespektrum, die den Abstand einer Photonenenergie aufweisen. Dieser Spezialfall der MPI wird als Above-Threshold-Ionisation (ATI) bezeichnet. Die Wahrscheinlichkeit für eine Wechselwirkung mit mehreren Photonen hängt natürlich von der Verfügbarkeit dieser Photonen im betreffenden Raumintervall ab. Je höher die Intensität, desto höher ist die Energie- und damit auch die Photonendichte. Daher können wir schon jetzt intuitiv feststellen, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit mit der Intensität steigen muss.
An dieser Stelle lohnt es sich zu erwähnen, dass MPI nur auftreten kann, wenn die Periodizität des alternierenden Potentialbergs nicht viel langsamer ist als die Zeit, die das Elektron benötigt, um adiabatisch auf die Änderung zu reagieren. Da diese „response time“ mit $t{\sim}1/I_p$ skaliert, ist die MPI besonders für hohe Ionisationspotentiale und große Wellenlängen (Infrarot) unterdrückt.
Ein dem Wellenbild ähnliches - auch klassisch genanntes - Modell ist in Abb. 2.2 rechts zu sehen. Noch stärkere Felder als bei der MPI verbiegen das Atom-Potential dermaßen, dass auch für tief gebundene Elektronen im Grundzustand eine endliche Wahrscheinlichkeit besteht, durch den Potentialberg zu tunneln. Daher nennen wir diesen Fall Tunnelionisation. Hierbei wird das Elektron durch das Tunneln mit $\vec{v}_{Start} = 0$ ins Kontinuum gehoben und erhält daher die auf dem Detektor gemessene Geschwindigkeit alleine durch die Beschleunigung im Feld (siehe Kap. 2.2.2).
Im Bild der MPI ist das Energiespektrum der Elektronen aus Einfachionisation intrinsisch diskret (durch die Ganzzahligkeit der absorbierten Photonen):

$$E_{MPI} = (n+s)\hbar\omega - (I_p + U_p) \quad . \tag{2.15}$$

n ist hierbei die minimale Anzahl Photonen, die zur Ionisation benötigt wird, s die bei ATI zusätzlich absorbierte Zahl. U_p muss als Verschiebung der Energie des Kontinuums darüber hinaus aufgebracht werden.

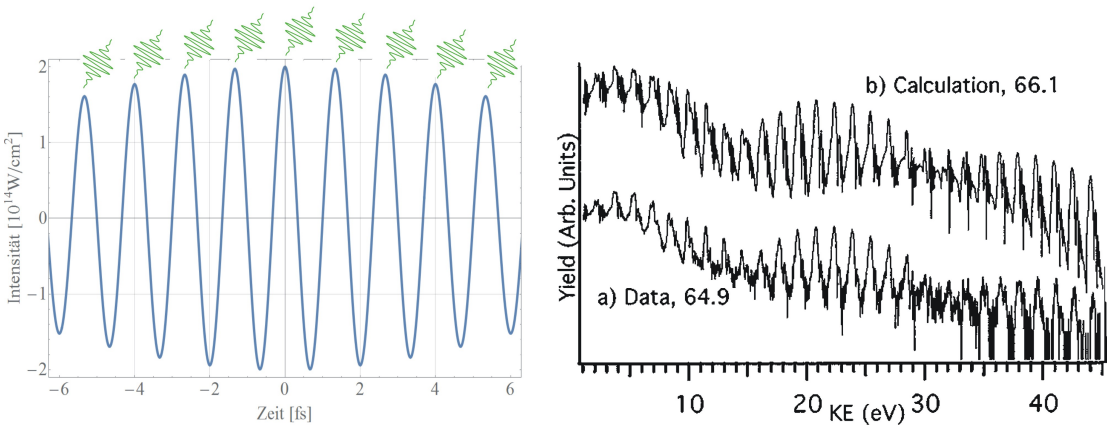


Abbildung 2.3.: Links: Vergrößerung von Abb. 2.1. Nahezu identische Wellenpakete (grün) starten periodisch zu jedem Feldmaximum und interferieren dadurch auch im Impulsraum. Rechts: Beispielhaftes ATI-Energiespektrum einer Messung von Nandor et al. (1999). Mit Pulsdauern von 120 fs wurde bei einer Wellenlänge von 800 nm Argon ionisiert (unten). Das entsprechende berechnete Spektrum ist oben dargestellt, die Intensitäten sind in TW/cm^2 angegeben. (NWVW99)

Im reinen Tunnelbild wird zum Verständnis der Diskretisierung der Kontinuumsenergie ein genauerer Blick nötig sein: Links in Abb. 2.3 sind die Oszillationen eines Laserpulses aus dessen Zentrum zu sehen. Deren Auslenkung ändert sich nur leicht, weshalb wir in diesem Bereich näherungsweise von einer CW-Amplitude ausgehen können. Die Ionisationswahrscheinlichkeit eines gebundenen Elektrons ist bei den Maxima der Intensität ebenfalls maximal (siehe Kap. 2.2.5), wodurch fast ausschließlich zu diesen Zeitpunkten Wellenpakete emittiert werden. Alle möglichen Pfade, die zum gleichen Endzustand führen, müssen dabei quantenmechanisch überlagert werden. Da der Impuls der Wellenpakete ausschließlich vom Vektorpotential des Feldes zum Zeitpunkt der Ionisation abhängt und die Wellenpakete periodisch in der Zeit entstehen, führt diese Interferenz wiederum zu einer Diskretisierung des Energiespektrums, dessen Maxima jeweils exakt durch eine Photonenenergie getrennt sind (siehe (APT11)).
Den Grenzfall im Bild der Tunnelionisation stellt die „**O**ver-**B**arrier-**I**onization“ (**OBI**) dar. Diese tritt auf, wenn das äußere Feld einen Schwellenwert übersteigt, sodass der Potentialberg unter den gebundenen Zustand gedrückt wird. Dadurch ist das Elektron ab diesem Zeitpunkt bis zum Abfallen des Feldes unter diesen Schwellenwert quasi-frei und muss nicht tunneln. Es wird also feldionisiert.
Zur Berechnung der Grenzintensität benötigen wir das Maximum des verbogenen Potentialbergs (Kar14)

$$V(x) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0}\frac{Ze^2}{|x|} - eE_0x \quad , \tag{2.16}$$

wobei x die Ortskoordinate in Abb. 2.2 ist. Das Maximum ergibt sich aus $dV/dx = 0$ und liefert

$$x_{max} = \sqrt{\frac{Ze}{4\pi\epsilon_0 E_0}} \quad , \tag{2.17}$$

sowie

$$V_{max} = \sqrt{\frac{Ze^3}{\pi\epsilon_0}E_0} \quad . \tag{2.18}$$

Damit können wir E_{Grenz} bestimmen

$$E_{Grenz} = 4\pi\epsilon_0\frac{I_P^2}{4Ze^3} \tag{2.19}$$

und erhalten für die Intensität I_{OBI}, ab der OBI stattfindet,

$$I_{OBI} = \frac{c\epsilon_0(4\pi\epsilon_0)^2}{32Z^2e^6}I_p^4 \quad . \tag{2.20}$$

Für das erste Ionisationspotential der in dieser Arbeit verwendeten atomaren Spezies Helium und Neon lauten die Grenzintensitäten

$$I_{OBI,He} = 1,5 \cdot 10^{15}\ W/cm^2 \tag{2.21}$$

sowie

$$I_{OBI,Ne} = 8,7 \cdot 10^{14}\ W/cm^2 \quad . \tag{2.22}$$

2.2.4. Der Keldysh-Parameter

Zunächst gehen wir wie beim Welle-Teilchen-Dualismus des Lichts davon aus, dass sowohl Tunnel- als auch Multiphotonenionisation gleichzeitig in einem starken Feld auftreten können. Wie bereits erwähnt, ist reine MPI jedoch bei langen Wellenlängen und großen Ionisationspotentialen im Rahmen der SFA ausgeschlossen. Können wir uns bei der Ionisation von Edelgasen durch 400 nm-Pulse deshalb auf die Tunnelionisation beschränken? Dazu müssen wir einen Blick auf die Überlegungen von Keldysh werfen (Kel65): Obwohl es einem klassischen Teilchen verboten ist, „unter der Barriere“ zu sein, können wir eine Zeit τ definieren, die nötig wäre, um den Potentialwall klassisch zu überwinden: $\tau = v_{max}/F = \sqrt{2I_p}/F$. Diese Zeit setzt Keldysh mit der Frequenz des alternierenden Feldes ω_L in Beziehung und erhält den nach ihm benannten Keldysh-Parameter

$$\gamma = \omega_L \tau = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}}. \tag{2.23}$$

Der Grund für die Einführung dieses Faktors ist die Überlegung, dass der Potentialberg während der „Tunnelzeit“ als quasi-statisch betrachtet werden kann, wenn $T_L = 2\pi/\omega_L \gg \tau$. Üblicherweise wird an dieser Stelle erwähnt, dass für $\gamma \ll 1$ das Tunnelbild und für $\gamma \gg 1$ das Multiphotonenbild Gültigkeit hat. Gerade aufgrund der Erkenntnis, dass Multiphotonenionisation für bestimmte Fälle der SFA ausgeschlossen ist, jedoch für $\gamma > 1$ trotzdem Ionisation auftritt, sollte das hinterfragt werden.
Tatsächlich ist für $\gamma \ll 1$ der Potentialberg als statisch zu betrachten und die Zeit, die das Teilchen „unter der Barriere“[7] verbringt, hat keinen Einfluss auf dessen Startimpuls. Dieser ist im quasi-statischen Fall $p_0 = 0$ (BGK$^+$02), wodurch der gemessene Impuls nur durch das Vektorpotential zum Zeitpunkt t_0 der Ionisation gegeben ist $p_{gemessen} = p_0 + eA(t_0) = eA(t_0)$.
Für $\gamma \sim 1$ bzw. $\gamma > 1$ ändert sich die Betrachtung des Potentialbergs: Dieser ist nun nicht mehr statisch interpretierbar und beeinflusst so das Teilchen, während es sich „unter der Barriere“ befindet. Das führt dazu, dass es während des Tunnelns mit dem Feld wechselwirken und so Photonen absorbieren kann. Der Startimpuls nach dem Tunneln verschwindet nicht mehr, sondern ist endlich und diskret. Im Rahmen der SFA tritt also bei $\gamma \geq 1$ auch Tunnelionisation mit Einfluss von Multiphotonen-Ionisation auf. Der Keldysh-Parameter ist dennoch ein sinnvoller Hinweis dafür, wie stark das wirkende Feld ist. Für $\gamma \ll 1$ spricht man üblicherweise von starken Feldern und wir bezeichnen Ionisation in diesem Regime als adiabatische Tunnelionisation. Für $\gamma \geq 1$ sprechen wir hingegen von nicht-adiabatischer Tunnelionisation.

[7] Für ausführliche Betrachtungen der quantenmechanischen Tunnelzeit sind (HS89) und (SH89) zu empfehlen. Tunnelzeit $t_i = Re(t_i) + iIm(t_i)$: $Re(t_i)$ ist die Zeit des Verlassens der Barriere, während $Im(t_i)$ die Zeit des Eintritts markiert (BS11).

2.2.5. Ionisationsraten (ADK)

Die wohl bekannteste Formel zur Berechnung der Ionisationsrate in einem linear polarisierten Feld ist die ADK-Formel. Sie verdankt ihren Namen ihren Entdeckern Ammosov, Delone und Krainov und geht auf deren Arbeit im Jahre 1986 zurück (ADK86). Ausgehend von der Tunnelformel für Wasserstoff entwickelten sie in quasi-klassischer Näherung einen Ausdruck für beliebige Atome. Dieser lautet

$$\Gamma_{ADK} = \sqrt{\frac{3n^{*3}E}{\pi Z^3}}\frac{ED^2}{8\pi Z}exp(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}E}) \tag{2.24}$$

mit

$$D \coloneqq (\frac{4eZ^3}{En^{*4}})^{n^*} \tag{2.25}$$

und $n^* = Z/\sqrt{2I_p}$ (DK98). Z ist die Kernladungszahl des entstandenen Ions. Die Ionisationsrate für einen Puls erhält man durch die Ersetzung $E = \hat{E}cos(\omega t)$ und Integration: $P(t) = \Gamma_{ADK}(E(t))dt$. Sie wird in der Einheit $[1/1\ a.u.\ (Zeit)]$ angegeben. Allerdings gilt diese Formel mathematisch strikt nur für $\gamma \ll 1$ und liefert nur bis etwa $\gamma{\sim}0,5$ verlässliche Werte (YI01). Für beliebige γ wurde später eine allgemeinere Form entdeckt, welche in (YI01) zu finden ist. Wichtig für die vorliegende Arbeit ist die Erkenntnis, dass die Ionisationrate exponentiell vom elektrischen Feld abhängt und Ionisation somit fast ausschließlich auf die Maxima der Laserintensität konzentriert ist.
Außerdem liefern die Autoren noch eine differenziellere Variante, die die Tunnelrate in Abhängigkeit des zur linearen Polarisation parallelen bzw. senkrechten Anteils des Impulses angibt:

$$\Gamma(p_\parallel, p_\perp) = \Gamma(0)exp[-\frac{p_\parallel^2\omega^2(2I_p)^{3/2}}{3E^3} - \frac{p_\perp^2(2I_p)^{1/2}}{E}] \tag{2.26}$$

mit

$$\Gamma(0) = \frac{p\omega^2D^2}{8\pi^3n^*E}exp(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3E}). \tag{2.27}$$

Der $p_\perp$ beinhaltende Term im Argument der Exponentialfunktion wächst betragsmäßig schneller als der Term mit $p_\parallel$. Das bedeutet, dass die Impulsverteilung senkrecht zur Polarisationsrichtung deutlich schmaler ist als in Polarisationsrichtung.

2.2.6. Fokusgeometrie und Focal Averaging

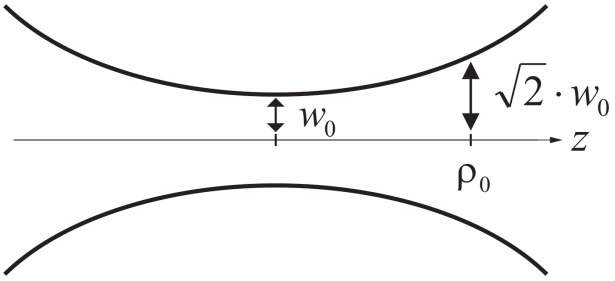


Abbildung 2.4.: Fokusgeometrie in Ausbreitungsrichtung des Lasers (z). ρ_0 ist die Rayleigh-Länge, w_0 der minimale Strahlradius transversal zur Ausbreitungsrichtung. (DR06)

Betrachten wir zunächst eine Wellenfront, die durch ein optisches Element fokussiert wird. Nach einer Reihe von Rechnungen, wie sie etwa in (DR06) detailliert dargestellt sind, wird klar, dass es sich beim Fokus nicht um einen Punkt handelt, sondern um einen ausgedehnten Bereich komplizierter Feldamplituden. Bei einem Gauß'schen Strahl hat die Intensitätsverteilung transversal zur Ausbreitungsrichtung (hier: z) - dem Namen entsprechend - Gaußform. In Ausbreitungsrichtung erreicht der Radius dieser Gaußverteilung (Strahlradius[8]) am Fokuspunkt einen Minimalwert w_0 (siehe Abb. 2.4) und kann als Funktion von z geschrieben werden:

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{\rho_0^2}} \quad , \tag{2.28}$$

mit

$$\rho_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad . \tag{2.29}$$

Außerdem gilt

$$w_0 = \frac{\lambda}{\pi \alpha} \tag{2.30}$$

mit der Divergenz α des Strahls

[8]Der Strahlradius beschreibt hierbei den Abstand von der z-Achse, bei dem transversal zur Ausbreitungsrichtung die Amplitude des Feldes auf $1/e^2$ abgefallen ist.

$$\alpha = arctan(\frac{w_u}{2f}) \quad , \tag{2.31}$$

wobei w_u den Strahlradius des unfokussierten Strahls angibt. ρ_0 ist die Rayleighlänge, bei der sich im Vergleich zur minimalen Strahlbreite die Fläche, die der Laserstrahl beleuchtet, verdoppelt hat. Da die gleiche Leistung für größere z auf größere Flächen verteilt ist, ändert sich damit auch die Peakintensität abhängig von z. Dadurch wird ersichtlich, dass sich Räume verschiedener Intensitäten im Fokusvolumen ergeben[9]. Wie in Kap. 2.2.2 gesehen, hängt aber die Verschiebung der Elektronenenergien im Kontinuum von der Intensität ab. Es findet dadurch eine Überlagerung der in verschiedenen Intensitätsbereichen entstehenden Elektronenenergieverteilungen statt, die gegeneinander leicht verschoben sind. Im Fall von ATI-Maxima im Energiespektrum führt das zu einer Verbreiterung dieser Maxima. Die Überlagerung verschiedener Intensitäten im Fokus und deren Auswirkungen wird generell „Focal Averaging“ genannt.

2.2.7. Freeman-Resonanzen

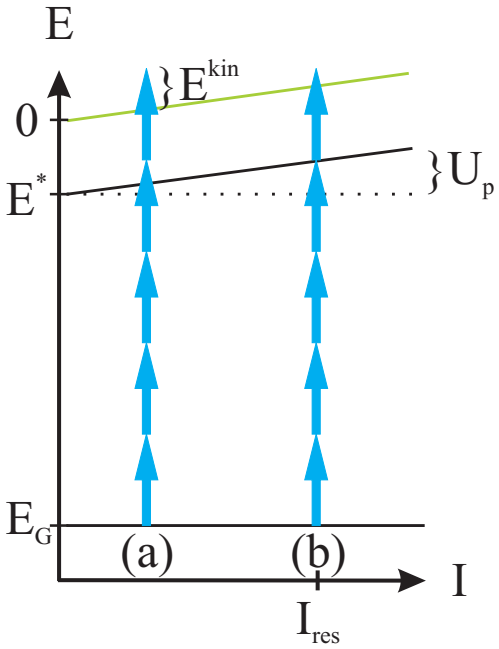


Abbildung 2.5.: Darstellung der Entstehung von Freeman-Resonanzen. E_G ist die Energie des Grundzustandes, E^* die Energie eines schwach gebundenen Zustandes. Das Kontinuum ist in grün dargestellt, Photonen in blau. (a): direkte MPI, (b): MPI über Resonanz. Details: siehe Text.

[9]Weitergehende anschauliche Betrachtungen sind in Abschnitt 3.2.4 zu finden.

Ein weiterer Effekt, der mit der Verschiebung der Energie-Niveaus in Abhängigkeit von der Intensität erklärbar ist, sind die sogenannten Freeman-Resonanzen. Wie schon in Kap. 2.2.2 angeklungen, führt die Wechselwirkung von gebundenen Elektronen mit einem oszillierenden äußeren Feld zu einer Verschiebung der Energieniveaus durch den AC-Stark-Effekt. Diese Verschiebung ist linear von der Intensität abhängig und besonders stark für schwach gebundene Zustände; stark gebundene Zustände - wie z.B. der Grundzustand - sind davon kaum betroffen (siehe (Mah07)). In Abb. 2.5 wird schematisch die Intensitätsabhängigkeit der AC-Stark-Verschiebung gezeigt. Im Fall (a) erfolgt die MPI direkt aus dem Grundzustand ins Kontinuum. Die kinetische Energie des freien Elektrons hängt hier von der Intensität zum Zeitpunkt der Ionisation ab.
Anders im Fall (b): Erreicht die Intensität kurzzeitig einen Wert I_{res}, für den der Grundzustand und ein AC-Stark-verschobener, schwach gebundener Zustand eine Energiedifferenz aufweisen, die einer ganzzahligen Photonenzahl entspricht, so tritt ein resonanter Übergang zwischen diesen beiden Energieniveaus auf. Dieser Übergang ist um mehrere Größenordnungen wahrscheinlicher als direkte MPI. Außerdem werden nur wenige Photonen benötigt, um das Elektron aus dem angeregten Zustand ins Kontinuum zu befördern. Dadurch dominieren die Resonanzen das Elektronenenergiespektrum (zumindest bei niedrigen Energien) für alle Intensitäten $I > I_{res}$. Erstmals beobachtet wurden sie von Freeman et al. im Jahr 1987 (FBM$^+$87), weshalb sie auch Freeman-Resonanzen genannt werden.
Charakteristisch für Ionisation über diese Resonanzen ist, dass die Kontinuumsenergie keine Intensitätsabhängigkeit mehr zeigt. Da das Kontinuum und schwach gebundene Zustände näherungsweise gleiche AC-Stark-Verschiebungen erfahren (nämlich um U_p), führt die Ionisation aus einem dieser schwach gebundenen Zustände bei jeder beliebigen Intensität zur gleichen kinetischen Energie der Elektronen. Außerdem tritt kein Focal Averaging für diesen Kanal auf, weshalb Freeman-Maxima deutlich schmaler sind im Vergleich zur direkten MPI. Eine ausführliche Behandlung der Freeman-Resonanzen ist in der vom Autor betreuten Bachelorarbeit von Mario Krüger zu finden: (Krü15).

2.3. Doppelionisation

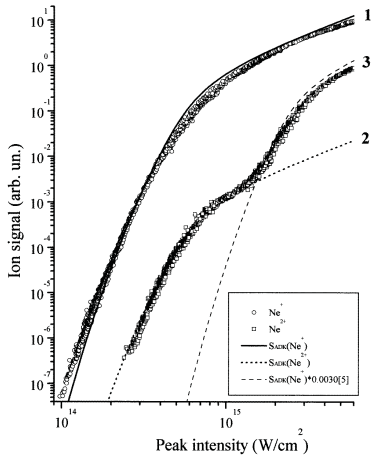


Abbildung 2.6.: Gemessene Einfach- und Doppelionisationsraten von Neon durch 800 nm-Laserpulse aus Larochelle et al. (1998) (LAC98). (1) Einfachionisationsrate in Abhängigkeit von der Intensität. (3) Durch sequentielle Ionisation erklärbarer Teil der Doppelionisationsrate. (2) Nicht durch sequentielle Ionisation erklärberer Teil der Doppelionisationsrate. Die resultierende intensitätsabhängige Doppelionisationsrate wird dank ihrer Plateauform oft als „Knie“ bezeichnet.

Nach der ersten Wechselwirkung eines Atoms mit einem starken äußeren Feld und einer daraus resultierenden Ionisation steht natürlich auch das entstandene Ion weiter unter dem Einfluss des Feldes. Eine nachfolgende Wechselwirkung ist deshalb keineswegs ausgeschlossen, wenn auch wesentlich unwahrscheinlicher, da das zweite Ionisationspotential des Atoms prinzipiell höher ist als das erste (siehe Kap. 2.2.5). Dieses Modell von zwei unabhängigen, nacheinander erfolgenden Ionisationsereignissen desselben Atoms im gleichen Puls wird als sequentielle Doppelionisation (SDI) bezeichnet. Die entsprechende Rate ist durch einfache Multiplikation der einzelnen ADK-Raten gegeben: $\Gamma_{SDI} = \Gamma_{ADK,neutral} \cdot \Gamma_{ADK,ionisiert}$. Für die meisten Intensitätsbereiche stimmt dies auch mit den beobachteten Werten überein, jedoch wurden für bestimmte Intensitätsintervalle stark erhöhte Doppelionisationsraten gemessen, die keinesfalls allein durch den sequentiellen Mechanismus erklärbar waren. Am Beispiel von Neon zeigt Abb. 2.6 diese erhöhten Raten, die die Form eines Plateaus aufweisen. Im Bereich dieses Plateaus müssen dementsprechend zusätzliche Vorgänge ablaufen.

2.3.1. Nichtsequentielle Doppelionisation

Entsprechend der vorhergehenden Benennung werden alle Doppelionisationsereignisse als nichtsequentiell bezeichnet (NSDI), die eine Wechselwirkung der Elektronen untereinander

beinhalten. Dieser Oberbegriff enthält eine Vielzahl spezifischer Mechanismen, die abhängig von experimentellen Parametern unterschiedlich stark auftreten und kohärent überlagert werden müssen. Die jeweiligen Modelle zu diesen Mechanismen unterliegen aktuell noch genaueren Untersuchungen.
Grundlegend für NSDI in der Starkfeldionisation mit Lasern und auch allgemein akzeptiert ist die sogenannte Rückstreuung oder englisch „Rescattering“, bei deren Untersuchung die Pionierarbeit von Kuchiev (Kuc87) und Corkum (Cor93) geleistet wurde. Hierbei kann bei den beiden ersten Schritten wieder die SFA angewendet werden: Im *ersten Schritt* tunnelt ein Elektron ins Kontinuum und wird im *zweiten Schritt* nur durch das Laserfeld beschleunigt. Die Trajektorie des Elektrons führt je nach Laserpolarisation mit einiger Wahrscheinlichkeit zurück zum Ion. Dadurch kann das Elektron im Feld Energie sammeln und danach mit dem Ion wechselwirken. Diese Wechselwirkung führt beispielsweise zu einer elastischen Streuung am Ion (Mec11) oder zum Einfang des Elektrons und Emission hoch energetischer Photonen (zusammenfassende Theorie in (LBI$^+$94)).
In dieser Arbeit beschränken wir uns aber auf die inelastische Streuung: Im *dritten Schritt* stößt das gestreute Elektron mit dem Ion und es kommt zu einem Energieübertrag. Wie wir später sehen werden, kann der Ablauf dieses Vorgangs unter anderem physikalische Einsichten in Wechselwirkungen zwischen Elektronen geben. Daher wollen wir nun die Kinematik des ersten Elektrons etwas genauer betrachten.

Elektronendynamik nach dem Tunneln

Starten wir mit Glg. 2.9. Je nach Tunnelzeitpunkt t_0 ist der Impuls des Elektrons nach dem Laserpuls (Driftimpuls) gegeben durch $\vec{p}_e = e\vec{A}(t_0)$. An den Maxima des Feldes, bei denen die Ionisationswahrscheinlichkeit mit Abstand am größten ist, gilt $\vec{A} = 0$ und somit verschwindet der Driftimpuls $p_e = 0$ für diese Fälle. Den maximalen Driftimpuls erhält ein Elektron, welches zum Zeitpunkt der Nulldurchgänge des Feldes tunnelt (FMU00): $p_{max} = 2e\sqrt{U_p}$.
Glg. 2.9 liefert einen Ausdruck für den instantanen Impuls des Elektrons zum Zeitpunkt t nach Tunneln bei t_0:

$$p(t, t_0) = \frac{e}{\omega}[E_A(t)sin(\omega t) - E_A(t_0)sin(\omega t_0)]. \tag{2.32}$$

Diese Gleichung können wir nun noch einmal integrieren, um den klassischen Ort des Elektrons zu erhalten. Dabei nutzen wir die Näherung, dass sich die Amplitude des Feldes nur langsam ändert und gehen daher von einer CW-Amplitude aus $E_A(t) = const = E_0$: (Mec11)

$$r(t, t_0) = \frac{1}{m_e}\int_{t_i}^{t} p(t', t_0)dt' = \frac{eE_0}{\omega m_e}[\omega(t - t_0)sin(\omega t_0) + cos(\omega t) - cos(\omega t_0)] + r(t_0)\ . \tag{2.33}$$

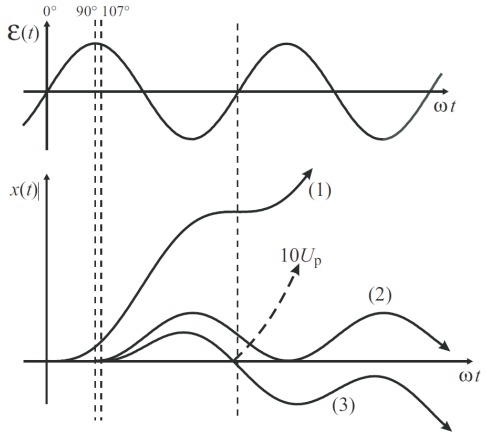


Abbildung 2.7.: Oben: Elektrisches Feld des Lasers. Unten: Darstellung der Rückstreutrajektorien des ersten Elektrons. Das Elektron tunnelt jeweils (1) am Feldnullpunkt, (2) am Feldmaximum und (3) im Falle einer Sinus-Schwingung bei $\omega t_0 = 107°$. Aus (FMU00) entnommen.

In Abb. 2.7 sind daraus resultierende typische Trajektorien des Elektrons nach dem Tunneln zu sehen. Ein Tunnelzeitpunkt zu den Nulldurchgängen des Feldes führt niemals zu Rückstreuung (1), wobei Tunneln zum Maximum des Feldes zwar Trajektorien bedingt, die zum Kern zurückkommen (2), dies jedoch mit Impuls $\vec{p}_e = 0$. Nur Tunnelzeiten zwischen Maximum und dem nächsten Nulldurchgang des Feldes führen zu Elektronen, die bei der Rückstreuung Energien ungleich null aufweisen (3).
Setzen wir Glg. 2.33 zu null, erhalten wir zu einem gegebenen Tunnelzeitpunkt t_0 einen Rückstreuzeitpunkt t. Die Zeit, die ab dem Tunneln bis zur Rückstreuung verstreicht, liegt in der Größenordnung von Femtosekunden. Das unterscheidet nichtsequentielle Doppelionisation durch diesen Mechansimus von anderen nichtsequentiellen Mechanismen (DWW$^+$02). Die Mechanismen „Shake-Off“[10] und „Two-Step-One“[11] sind im Vergleich zur Periode des Laserfeldes als instantan zu betrachten. Dieser Unterschied schlägt sich auch in den Impulsen der doppelt geladenen Ionen wieder, die bei der Rückstreuung durch eine Doppelpeakstruktur gekennzeichnet sind. Alle anderen Mechanismen liefern Impulsverteilungen um $p = 0$ verteilt. Die Doppelpeakstruktur hat ihren Ursprung in der signifikanten Beschleunigung von Ion und Elektron zwischen erster Ionisation und Rückstreuung und dem daraus folgenden Energiegewinn im Feld.
Einen Hinweis auf die Validität des Rückstreumodells liefert die beobachtete Abhängigkeit der Doppelionisation von der Elliptizität. Wie Corkum schon in (Cor93) erkannt hat,

[10]Nach der ersten Ionisation relaxieren alle gebundenen Elektronen in die Eigenzustände eines neuen Potentials. Teile davon liegen im Kontinuum und ermöglichen dadurch Doppelionisation.
[11]Ein Elektron stößt auf dem Weg ins Kontinuum mit einem zweiten Elektron und führt so zu Doppelionisation.

führen die Trajektorien des Elektrons im zirkular polarisierten Feld nicht mehr zurück zum Ion[12]. Daher sollte NSDI durch Rückstreuung bei Veränderung der Elliptizität des Lichtes hin zu zirkularer Polarisation stark unterdrückt werden. Das ist auch in mehreren Experimenten beobachtet worden, unter anderem im Zuge der Masterarbeit des Autors (Hen13).

Im Rahmen der quantitativen Rescattering (QRS) Theorie analysieren Lin et al. (CLL10) detailliert den Rückstreumechanismus. Hier wurden unter Berücksichtigung der Wechselwirkungsquerschnitte für Elektronenstoßanregung und Elektronenstoßionisation korrelierte Zweielektronenimpulsspektren im Kontinuum für die Doppelionisation von Helium durch 800 nm-Laserpulse berechnet und mit den experimentellen Ergebnissen von Staudte et al. (SRS$^+$07) verglichen. Die in Betracht gezogenen Mechanismen sind (a) direkte Stoßionisation und (b) Ionisation nach Stoßanregung. Da diese allein die gemessenen Daten nicht vollständig erklären können, wird außerdem ein doppelt angeregter Zwischenzustand (c) als möglicher zusätzlicher Mechanismus vorgeschlagen. Auf diese drei Möglichkeiten wollen wir nun genauer eingehen und anschließend noch andere mögliche Mechanismen aufzeigen.

Direkte Stoßdoppelionisation (Recollision-Ionization)

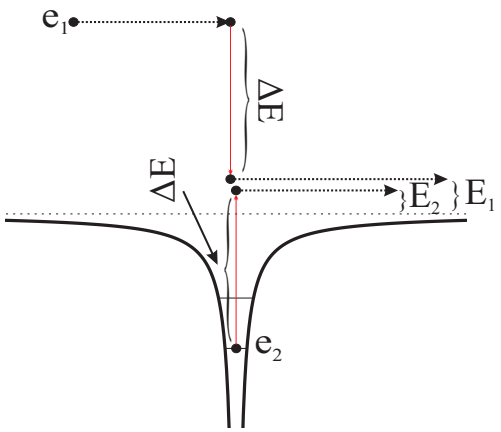


Abbildung 2.8.: Direkte Stoßdoppelionisation (Recollision-Ionization). Das freie, im Laserfeld beschleunigte Elektron e_1 ionisiert ein zweites, gebundenes Elektron e_2. Die übertragene Energie ΔE muss größer sein als das zweite Ionisationspotential des Atoms.

Mit Gleichung 2.32 ist ein maximaler Impuls zum Zeitpunkt der Rückstreuung bestimmbar. In (LBI$^+$94) und (FMU00) ist diese Rechnung durchgeführt, die das Ergebnis

[12]Es gibt hierbei Ausnahmen: In Experimenten wurde bei zirkular polarisiertem Licht ein für NSDI typisches Knie beobachtet (GG01) (GWVW01), welches theoretische Arbeiten von Mauger et al. (MCU10) (KMCU13) untermauern. Hier spielen die Phasenlage zwischen der Einhüllenden des Laserfeldes und dem Tunnelzeitpunkt eine entscheidende Rolle.

$$E_{max,recollision} = 3,17 \cdot U_p \tag{2.34}$$

liefert. [13]
Um direkte Stoßionisation möglich zu machen (wie sie in Abb. 2.8 skizziert ist), muss diese Energie ausreichen, um ein zweites, gebundenes Elektron ins Kontinuum zu heben: $E_{max,recollision} \geq I_{p,+} + U_p$. Das führt zu $2,17U_p \geq I_{p,+}$. In dieser Arbeit untersuchen wir die Doppelionisation von Helium ($I_{p,He^+} = 54,42\ eV$) und Neon ($I_{p,Ne^+} = 40,96\ eV$) mit 400 nm-Laserpulsen. Die entsprechenden Grenzen für U_p, ab welchen direkte Stoßdoppelionisation energetisch erlaubt ist, liegen bei $U_{p,min,He} = 25,08\ eV$ für Helium und $U_{p,min,Ne} = 18,88\ eV$ für Neon. Mit Glg. 2.13 können die entsprechenden Intensitäten für eine Wellenlänge von 400 nm berechnet werden: $I_{min,He} = 1,68 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$ und $I_{min,Ne} = 1,26 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$.

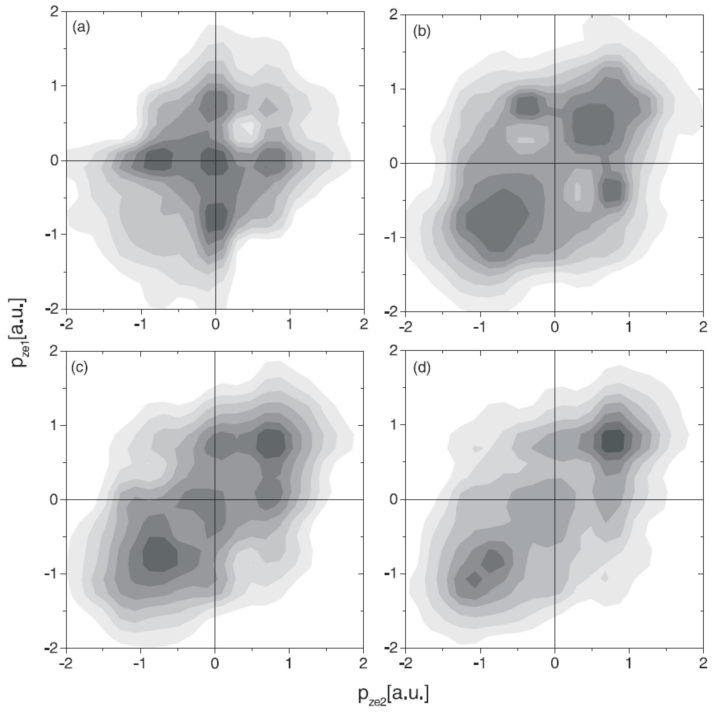


Abbildung 2.9.: Die Komponenten der Impulse beider Elektronen nach Doppelionisation in Polarisationsrichtung. Die transversale Impulskomponente eines Elektrons liegt im Intervall (a) $p_\perp < 0.1\ au$, (b) $0.1\ au < p_\perp < 0.2\ au$, (c) $0.2\ au < p_\perp < 0.3\ au$ und (d) $0.3\ au < p_\perp < 0.4\ au$. Aus (WHC$^+$01) entnommen.

Andere - auch erfolgreiche - Modelle betrachten den Rückstroßprozess hingegen als feldfreien Elektronenstoß (CLL10). Dann hätte die Ungleichung $3,17U_p \geq I_{p,+}$ Gültigkeit. In

[13] Wie in Abb. 2.7 zu sehen, erhalten Elektronen maximale Energie, wenn sie 17 Grad nach dem Maximum des Feldes geboren werden.

Referenz (CZYS15) wird das Feld zum Zeitpunkt der Rückstreuung sogar als Absenkung des Ionisationspotentials interpretiert. Mit den in dieser Arbeit vorliegenden Parametern entspräche das einer Absenkung um etwa $3 - 4\ eV$. Je nach Annahme können sich die berechneten Grenzen also durchaus leicht nach unten verschieben.
Unabhängig von der Intensität werden beide Elektronen durch den Stoß gleichzeitig in der Nähe des Ions ins Kontinuum gehoben. Außerdem wurde in einer Vielzahl an Rechnungen (bspw. (CLFZ00) (BF02)) und auch in Experimenten (z.B. (SRS$^+$07)) eine erhöhte Emissionswahrscheinlichkeit beider Elektronen in die gleiche Hemisphäre beobachtet. Erklärt wird das in der Literatur mit der Emission beider Elektronen (durch Recollision) zum Zeitpunkt des Nulldurchgangs des elektrischen Feldes. Dann erhalten diese Elektronen den maximalen Driftimpuls und werden in die gleiche Richtung beschleunigt (erster und dritter Quadrant in Abb. 2.9). Somit können die Achsen aus Abb. 2.9 als Zeitachsen interpretiert werden: Die Impulskomponente in Polarisationsrichtung wird direkt durch das Vektorpotential zum Zeitpunkt der Ionisation festgelegt. Die Elektron-Elektron Abstoßung ist zwar durch die gleichzeitige Ionisation beider Elektronen am nahezu gleichen Ort signifikant, führt jedoch nur zu einem verglichen mit dem Driftimpuls kleinen Impulsübertrag. Daher sorgt sie in den entsprechenden Quadranten (erneut erster und dritter) zu einer Verbreiterung der Verteilungen. Doppelionisation, die nicht beim Nulldurchgang des Feldes stattfindet, führt zu kleineren Driftimpulsen. Sind diese kleiner als die durch die Abstoßung der Elektronen verursachten Impulsbeträge, kann es auch zu antikorrelierter Emission kommen (back-to-back-Emission, B2B) (ZZBW15).
Die elektrostatische Abstoßung der Elektronen sollte vor allem bei Impulsen $\vec{p}_{e1} \approx \vec{p}_{e2}$ auch an anderer Stelle in den Messdaten beobachtbar sein. Als besonders geeignete Größe zur Untersuchung der Elektronenabstoßung erweist sich die Impulskomponente senkrecht zum Feld. Diese ist laut ADK-Theorie (Kap. 2.2.5) besonders schmal und dazu exakt um $p_\perp = 0$ verteilt. Große Impulse $p_\perp \neq 0$ lassen daher auf signifikante Elektron-Elektron Abstoßung schließen, die bei gleichzeitig ionisierten Elektronen - wie bei direkter Stoßionisation - besonders stark ist. Weckenbrock et al. (WHC$^+$01) haben das erstmals in der Doppelionisation von Argon durch 800 nm-Laserpulse untersucht. Abb. 2.9 zeigt dazu die Impulskomponenten der beiden Elektronen aus Doppelionisation in Polarisationsrichtung abhängig von der transversalen Impulskomponente. Hierbei ist zu erkennen, dass größere Transversalimpulse zu einem ausgeprägten Maximum im ersten und dritten Quadranten führen. Wir können also schlussfolgern, dass Elektronen, die in Polarisationsrichtung mit sehr ähnlichen Impulsen gestartet sind und diese Impulse auch bis zur Messung beibehalten haben, in transversaler Richtung starke Abstoßung erfahren. Das legt einen gleichzeitigen Start der Elektronen nahe, was mit dem Modell der direkten Stoßdoppelionisation übereinstimmt.

Doppelionisation über Stoßanregung (RESI)

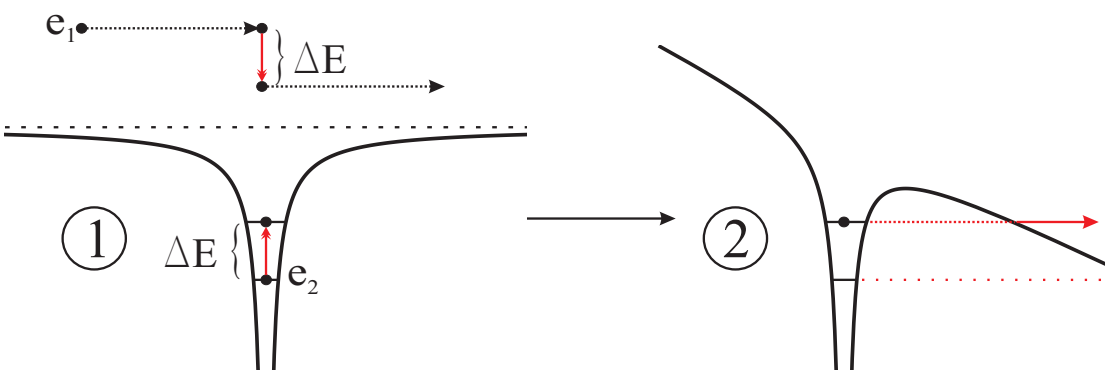


Abbildung 2.10.: Doppelionisation über Stoßanregung (RESI). Das rückstreuende Elektron e_1 regt in *Schritt 1* ein gebundenes Elektron e_2 in einen energetisch höheren Zustand an. Aus diesem kann e_2 bei einem der folgenden Feldmaxima in *Schritt 2* mit stark erhöhter Wahrscheinlichkeit ins Kontinuum tunneln.

Unter der Schwelle für direkte Stoßionisation wird ebenfalls NSDI beobachtet. Das ist unter anderem auf die sogenannte „Recollision Excitation with Subsequent Ionization“ (kurz: RESI) zurückzuführen. Schematisch ist dazu in Abb. 2.10 dieser zweischrittige Prozess abgebildet. Während der inelastischen Streuung findet ein Energieübertrag statt, der ein gebundenes Elektron in einen angeregten Zustand befördert. Das rückstoßende Elektron ist nach der Streuung weiterhin frei, das gebundene Elektron profitiert hierbei von einer deutlich erhöhten Tunnelwahrscheinlichkeit im weiteren Verlauf des Pulses. Doppelionisation über diesen Kanal befördert die Elektronen also im Allgemeinen nicht gleichzeitig während des Pulses ins Kontinuum, wodurch deren messbarer Endzustand daher kaum Zeichen von Elektronenabstoßung zeigen sollte. Außerdem erfolgt die Emission der Elektronen gleich wahrscheinlich in gleiche wie in entgegengesetzte Halbebenen, da das zweite Elektron statistisch entweder in die Richtung des ersten Elektrons oder entgegengesetzt emittiert wird (bspw. zu sehen in (SNMF10)).
Allerdings können verschiedene Effekte auch zu asymmetrischen Verteilungen führen. Klassische Rechnungen (HS07) offenbaren einen „Boomerang“-Effekt, der einen Vorzeichenwechsel in der zum Feld parallelen Impulskomponente des rückstoßenden Elektrons bedingt. Dieser führt beispielsweise für den Fall von Helium bei 483 nm und einer Intensität von $5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ zu bevorzugter B2B-Emission (HSSP08). Und auch in den Referenzen (YL10) sowie (LYL$^+$11) wurde unter anderem der RESI-Prozess als Grund für die beobachtete bevorzugte B2B-Emission identifiziert.
Quantenmechanische Rechnungen (HCL$^+$14) (MMF15) führen ebenfalls zu diesem Ergebnis: Die Interferenz verschiedener RESI-Kanäle - also verschiedener angeregter Zustände - hat in bestimmten Fällen eine erhöhte antikorrelierte Emission zur Folge.

Die niedrigsten angeregten Zustände, die aus dem Grundzustand der He^+- und Ne^+-Ionen erreicht werden können, liegen jeweils bei $E_{He^+,Anregung} = 40,81\ eV$ und $E_{Ne^+,Anregung} = 26,91\ eV$. Gehen wir näherungsweise von einer AC-Stark-Verschiebung der angeregten Zustände um U_p aus, können wir die Abschätzung aus dem vorhergehenden Abschnitt verwenden und erhalten als Untergrenzen für Doppelionisation über Stoßanregung $U_{p,min,He} = 18,81\ eV$ bzw. $U_{p,min,Ne} = 12,4\ eV$. Das entspricht den Intensitäten $I_{min,He} = 1,2 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$ und $I_{min,Ne} = 8 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$.

Doppelionisation über einen doppeltangeregten Zwischenzustand

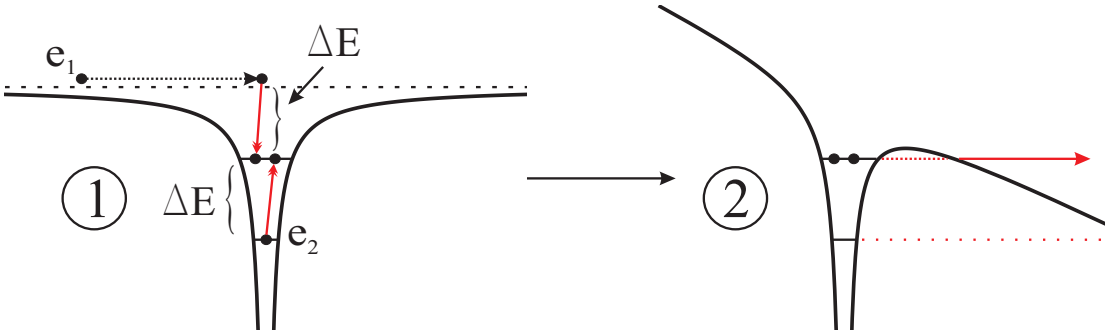


Abbildung 2.11.: Doppelionisation über einen doppeltangeregten Zwischenzustand. Das rückstreuende Elektron e_1 geht in *Schritt 1* in einen gebundenen und angeregten Zustand über, wodurch genug Energie zur Verfügung steht, ein weiteres gebundenes Elektron anzuregen. In *Schritt 2* tunneln beide Elektronen unabhängig voneinander ins Kontinuum.

Auch unter der Schwelle für RESI kommt es zu NSDI. Abb. 2.11 zeigt den verantwortlichen Prozess, der auch bei niedrigeren Intensitäten zur Doppelionisation führen kann. Das rückstreuende Elektron wird vom Ion eingefangen und besetzt danach einen angeregten, gebundenen Zustand. Dabei überträgt es die frei werdende Energie an ein weiteres gebundenes Elektron, welches dadurch ebenfalls angeregt wird. Aus diesem doppeltangeregten Zwischenzustand tunneln beide Elektronen quasi sequentiell (also unabhängig) ins Kontinuum oder es kommt zur Over-Barrier-Ionisation.
Näherungsweise können wir auch in diesem Fall annehmen, dass alle angeregten Zustände etwa um U_p AC-Stark-verschoben sind. Die beiden niedrigsten angeregten Zustände im neutralen Atom sind für Helium ${}^3S\ (1s2s, E_{He,Anregung,1} = 19,8\ eV)$ und ${}^1S\ (1s2s, E_{He,Anregung,2} = 20,6\ eV)$, für Neon ${}^2[3/2]^o$ mit $J = 2\ (2s^2 2p^5({}^2P^o_{3/2})3s,\ E_{Ne,Anregung,1} = 16,6\ eV)$ und ${}^2[3/2]^o$ mit $J = 1\ (2s^2 2p^5({}^2P^o_{3/2})3s,\ E_{Ne,Anregung,2} = 16,7\ eV)$. Das minimal nötige $U_{p,min}$ erfüllt folgende Gleichung

$$3,17U_{p,min} + (I_{p,neutral} - E_{Anregung,1}) = E_{Anregung,2} + U_{p,min} \quad . \tag{2.35}$$

Damit ergeben sich für Helium $U_{p,min} = 7,3\ eV$ und für Neon $U_{p,min} = 5,4\ eV$. Die entsprechenden minimalen Intensitäten für Doppelionisation über einen doppeltangeregten Zwischenzustand lauten demnach $I_{min,He} = 4,9 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ und $I_{min,Ne} = 3,6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$. Die realen Intensitätsminima liegen allerdings etwas unter den abgeschätzten Werten, da die angeregten Zustände um weniger als U_p verschoben sind und damit sowohl mehr Energie vom ersten Elektron gewonnen als auch weniger zur Anregung des zweiten Elektrons benötigt wird. Außerdem ist der Fall der Over-Barrier-Ionisation nicht mit einbezogen.
Im dargestellten Prozess tunneln beide Elektronen unabhängig voneinander aus dem bindenden Potential und werden daher in der Regel zu verschiedenen Zyklen des Feldes ionisiert. Die Autoren von (CLL10) identifizieren diesen Prozess in den Daten aus (SRS$^+$07) mit Elektronenpaaren, bei denen ein Elektron eine sehr kleine Energie und das andere eine große Energie aufweist. Die hohe Energie des einen Elektrons resultiert dabei aus der niedrigen Bindungsenergie des doppeltangeregten Zustandes und der daraus folgenden Over-Barrier-Ionisation nahe des Feldminimums, die durch das große Vektorpotential zu einem hohen Impuls führt. Das zweite Elektron tunnelt aus einem tief gebundenen Zustand am Feldmaximum und erhält dadurch einen vergleichsweise kleinen Impuls. Rechnungen zur Helium-Doppelionisation durch 800 nm-Pulse unter der Schwelle für direkte Stoßdoppelionisation haben aber auch einen anderen Fall nahegelegt (LL10): Beide Elektronen können simultan ein Vielfaches der Photonenenergie absorbieren und diese Energie dann kontinuierlich teilen. Und auch für Helium bei 400 nm-Pulsen kann - Haan et al. zufolge (HS07) - bei relativ hohen Intensitäten von $1,1 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$ gleichzeitige Ionisation beider Elektronen aus einem doppelt angeregten Zustand auftreten.
Für den Fall von Argon wurden zwei der bisher wenigen Fälle von doppelt angeregten Zuständen zunächst von Camus et al. (CFK$^+$12) und später auch vom Autor dieser Arbeit (HWT$^+$13) in Experimenten beobachtet. Im ersten Fall konnte bei sehr kurzen Pulsen ($< 6\ fs$) nachgewiesen werden, dass der doppelt angeregte Zustand jede Information über seine Entstehung verloren hat. Im letzten Fall wurde beobachtet, dass die Energiespektren beider Elektronen ATI-Sequenzen mit verschiedenen Versetzungen (englisch: Offsets) enthalten, die auf zwei verschiedene angeregte Zustände schließen lassen.

Andere Mechanismen

Die Modelle der nichtsequentiellen Doppelionisation sind vor allem bei niedrigen Intensitäten keinesfalls vollständig. Keine Rechnung kann bisher alle experimentellen Ergebnisse reproduzieren und auch das physikalische Verständnis befindet sich noch in den Kinderschuhen. Daher wurden vielseitige Versuche unternommen, alternative Möglichkeiten zu den drei bisher etablierten und auf den vorigen Seiten besprochenen Mechanismen zu finden.
Schon 2006 konnten Parker et al. (PDT$^+$06) die Doppelionisation von Helium durch 390 nm-Laserpulse experimentell und theoretisch untersuchen. Die gewählten Intensitäten lagen unterhalb der Schwelle für direkte Stoßionisation und ein theoretisches Modell wurde entwickelt, das die gemessenen Daten reproduziert. Die Autoren behandelten das rückstreuende Elektron in ihren Rechnungen als elektrischen Feldimpuls zu den Zeitpunkten der

Stöße (jeweils nahe der Nulldurchgänge des Laserfeldes). Hierbei sind bei den betrachteten Intensitäten weder diese Feldimpulse noch das Laserfeld allein in der Lage, Doppelionisation herbeizuführen. Einzig die Überlagerung beider Felder führt zu den beobachteten Elektronenverteilungen und erklärt die Doppelionisation auch unter der Schwelle.
Liu et al. gelang es 2008 (LTR$^+$08), bei sehr niedrigen Intensitäten unter der Grenze für direkte Stoßionisation im Multiphotonenregime Doppelionisation von Argon zu messen. Dabei fiel eine klare B2B-Bevorzugung in der Elektronenemission auf. Die Autoren interpretierten ihre Beobachtungen mit einem Modell, bei dem ein Elektron im gemeinsamen Potential aus Laserfeld und Coulomb-Feld des Ions nah am Kern gefangen ist, jedoch als Antenne agiert (wie schon in der Frühzeit des Rückstreumodells von Kuchiev et al. (Kuc87) angenommen). Es kann Energie vom Feld aufnehmen und mehrfach inelastische Stöße mit dem Ion ausführen, welche ein zweites Elektron sukzessive anregen. Im klassischen Bild könnte so auch Doppelionisation unter der berechneten Schwelle für direkte Doppelanregung stattfinden - in den Mechanismen wurde bisher immer nur von einem Stoß ausgegangen. Ähnliches behaupten auch Ye et al. (YL10) und Haan et al. (HSSP08), die in ihren Rechnungen einen zweiten Stoß des Elektrons bei niedrigen Intensitäten für einen Teil der Doppelionisation verantwortlich machen. Und Liu et al. (LYL$^+$11) konnten später erneut experimentell bei sehr niedrigen Intensitäten Anzeichen für mehrere Stöße mit Energieübertrag bei der Doppelionisation von Argon beobachten.
Eine andere Möglichkeit im klassischen Bild schlagen Zhou et al. (ZLL09) vor: Das Laserfeld wechselt sein Vorzeichen periodisch im zeitlichen Abstand von $T/2$. Ohne Coulomb-Potential folgt das quasi-freie Elektron diesem Wechsel, wodurch es gewonnene Energie wieder verliert. Gibt man jedoch die SFA auf und bezieht auch das Coulomb-Potential des Ions mit ein[14], gibt es Trajektorien, auf welchen das Elektron nicht mehr nur innerhalb einer halben Periode des Laserfeldes effektiv Energie sammeln kann. Wird nämlich die Impulsrichtung des Elektrons durch das Coulomb-Feld derart verändert, dass der Richtungswechsel des Laserfeldes nicht mehr zur Abbremsung führt, kann es auch danach noch Energie vom Feld aufnehmen, was die Energiebetrachtungen verändert und auch bei niedrigeren Intensitäten Doppelionisation ermöglicht.
Bondar et al. (BYL$^+$11) überspringen den Schritt der Ionisation des ersten Elektrons. Sie untersuchen in ihren Rechnungen nur die Situation, dass ein freies Elektron zeitgleich mit der Ionisation eines Ions mit diesem inelastisch stößt. Dadurch lässt sich Doppelionisation unter den oben berechneten Schwellen realisieren, ohne dass es zu einer Anregung des Ions gekommen ist. Dieser Effekt wird **S**imultaneous **E**lectron **E**mission (SEE) genannt und ist bedeutsam für kleine Impulse des stoßenden Elektrons. Das Coulomb-Feld dieses Elektrons führt nach der Emission des zweiten Elektrons zu effektiver Abstoßung der beiden Elektronen und damit zu B2B-Emission, was SEE eindeutig von RESI unterscheidet. Von Ionisation aus einem doppelt angeregten Zustand unterscheidet SEE, dass bei letzterem beide Elektronen gleichzeitig ionisiert werden und damit $\Delta p_\perp$ von Null verschieden ist.

[14] Je kleiner die Intensitäten, desto weniger Gültigkeit haben SFA und die Annahme, dass das Coulomb-Potential des Ions keine Rolle spielt.

Ionen

Bisher haben sich unsere Betrachtungen ausschließlich auf die Elektronen beschränkt. Was jedoch passiert mit den zurückgestoßenen Ionen?
Der Impuls der Photonen kann mit $p = \frac{h}{\lambda}$ gegenüber Elektron und Ion vernachlässigt werden. Im gebundenen Zustand gehen wir von einem ruhenden Atom aus und daher von einem Gesamtimpuls $\vec{p}_{ges} = \sum_{n=1}^{N} (\vec{p}_{Elektron\ n}) + \vec{p}_{Ion} = 0$. Da das äußere elektrische Feld auf das Ion - verglichen mit den Elektronen - exakt entgegengesetzt wirkt, bleibt dieser Gesamtimpuls auch nach Abklingen des Laserpulses und zum Zeitpunkt der Messung erhalten und es gilt $\vec{p}_{Ion} = -\vec{p}_{Elektronen}$. Somit können wir aus der Messung des Ions über die Impulserhaltung direkt Informationen über die Elektronen erhalten.
Exakte Kinematiken sind in Referenz (DMJ$^+$00) zu finden.

2.3.2. Energieerhaltung in der Doppelionisation

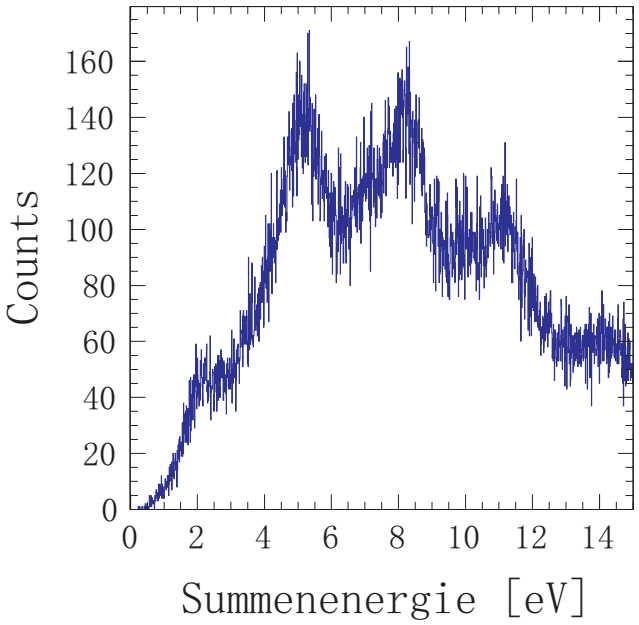


Abbildung 2.12.: Summenenergie beider Elektronen nach der Doppelionisation von Argon durch 400 nm-Laserpulse bei einer Intensität von $1,3 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ (Daten aus (Hen13)).

Aus der Einfachionisation sind uns ATI-Maxima bekannt, die aus der Ganzzahligkeit der absorbierten Photonen resultieren. Das System aus Ion und Elektronen kann auch im Fall von Doppelionisation nur ganzzahlige Vielfache der Photonenenergie vom Feld erhalten.

Dadurch ist leicht ersichtlich, dass auch hier eine Diskretisierung der Energie stattfinden muss. Unabhängig vom Mechanismus sollte das Summenenergiespektrum beider Elektronen daher Maxima zeigen, die jeweils den Abstand einer Photonenenergie aufweisen:

$$E_{e1} + E_{e2} = n\hbar\omega - (I_{p,1} + U_p) - (I_{p,2} + U_p), \tag{2.36}$$

wobei $I_{p,1}$ und $I_{p,2}$ jeweils das erste bzw. zweite Ionisationspotential des betrachteten Atoms sind. Etliche theoretische Veröffentlichungen haben diese ATDI-Maxima[15] durch numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung für unterschiedliche Wellenlängen gezeigt und vorhergesagt (LGE01) (PMM$^+$01) (PDT$^+$06) (LL10) (APT11). Zwei Beispiele dazu sind in Abb. 2.13 zu sehen.

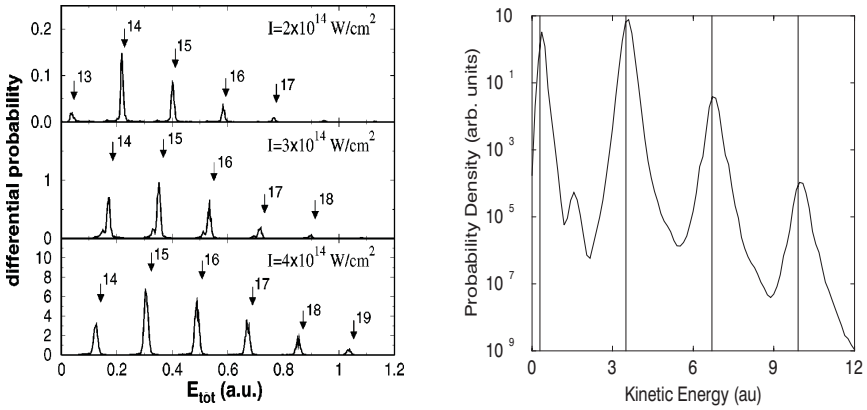


Abbildung 2.13.: Ergebnisse theoretischer Rechnungen am Helium-Atom von Lein et al. (LGE01) (links) und Parker et al. (PMM$^+$01) (rechts). Die Wellenlänge betrug im linken Fall 250 nm und im rechten 14 nm.

Allerdings gelang es erst 2013 im Rahmen der Masterarbeit des Autors, diese Energiequantisierung in der Doppelionisation experimentell zu belegen (Hen13) (HWT$^+$13)[16]. Aus dieser Arbeit ist in Abb. 2.12 das Summenenergiespektrum beider Elektronen nach Doppelionisation von Argon zu sehen. Es wurde vermutet, dass das Focal Averaging (siehe Kap. 2.2.6) diese Beobachtung im Experiment zuvor verhindert hat. Wegen der quadratischen Abhängigkeit des ponderomotorischen Potentials von der Wellenlänge wurden bei dieser Messung daher nicht mehr - wie bis dahin üblich - 800 nm- sondern 400 nm-Laserpulse verwendet, um den Einfluss des Focal Averagings zu verringern und den Abstand der ATDI-Maxima zu erhöhen. Dadurch konnten diese Maxima mit einem Abstand von jeweils etwa $3,1$ eV (Photonenenergie bei 400 nm) nachgewiesen werden und ein Zählen der vom gesamten System absorbierten Photonen ist prinzipiell möglich geworden.

[15] ATDI steht entsprechend für „**A**bove-**T**hreshold-**D**ouble-**I**onization“.

[16] 2015 ist ein weiterer Nachweis gelungen, dieses Mal bei der Doppelionisation eines Moleküls (GSJ$^+$15).

2.3.3. Elektronenkorrelation in der Doppelionisation

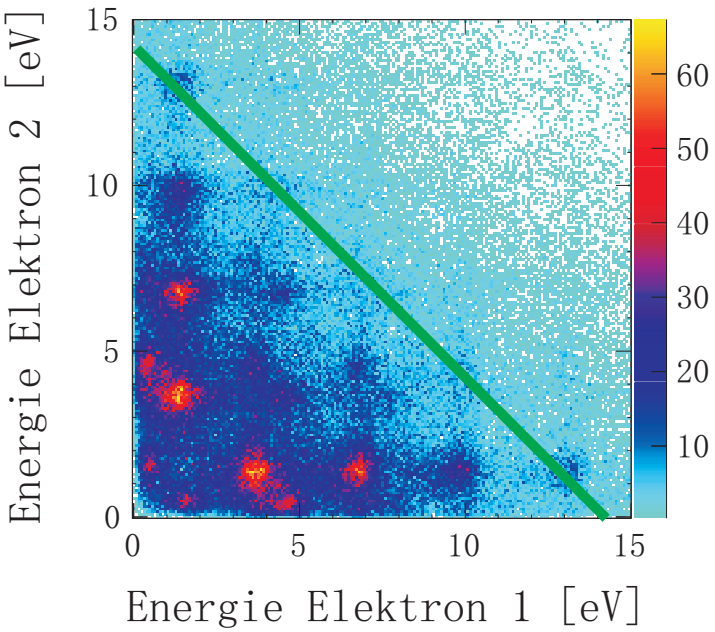


Abbildung 2.14.: Energiekorrelation der Elektronen aus Doppelionisation von Argon. Zur Ionisation wurden 400 nm-Laserpulse bei einer Intensität von $1,3{\cdot}10^{14}\frac{W}{cm^2}$ verwendet. (Abszisse) Energie eines Elektrons, (Ordinate) Energie des anderen Elektrons. Der grüne Balken kennzeichnet einen Bereich gleicher Summenenergie. (Daten aus (Hen13)).

In Kap. 2.3.1 haben wir in Abb. 2.9 schon ein Beispiel für Elektronenkorrelation in der Doppelionisation gesehen: die Elektronenabstoßung. Diese zeigt sich besonders deutlich, wenn beide Elektronen zeitgleich emittiert werden. In der direkten Stoßdoppelionisation ist das der Fall, bei RESI kommt es jedoch zu einem Zeitversatz der Ionisation des zweiten Elektrons und somit sollte die Abstoßung keine große Rolle spielen. Bei der Doppelionisation über einen doppelt angeregten Zwischenzustand können beide Fälle auftreten. (a) Entweder beide Elektronen werden im gleichen Zyklus emittiert, was besonders bei Over-Barrier-Ionisation oder angeregten Zuständen knapp unter dem unterdrückten Potentialberg der Fall ist. (b) Oder die Elektronen tunneln unabhängig voneinander bei beliebigen Feldmaxima nach dem Rescattering aus den angeregten Zuständen. Im Experiment sollten sich diese beiden Fälle in der Impulsverteilung transversal zur Polarisation unterscheiden, wobei Fall (a) im Gegensatz zu (b) zu Impulsen signifikant verschieden von $p_\perp = 0$ führt. Eine weitere Möglichkeit, Korrelationen zwischen den Elektronen zu entdecken, liegt in der Betrachtung der Aufteilung der vom Feld gesammelten Energie. Als Beispiel zeigt Abb.

2.14 die gemessene Energiekorrelation der beiden Elektronen aus der Doppelionisation von Argon (Hen13). Mit einem grünen Balken ist ein Bereich eingezeichnet, der gleiche Summenenergie repräsentiert. Würden die beiden Elektronen ihre (diskrete) Gesamtenergie kontinuierlich und zufällig untereinander aufteilen, wären im gegebenen Histogramm parallele Diagonalstrukturen dieser Art zu finden. Im Fall der direkten Stoßdoppelionisation erwarten wir ein solches Bild.
Erhalten beide Elektronen unabhängig voneinander Energie vom Feld, erwarten wir hingegen diskrete Inseln in der Energiekorrelation, die aus der Überlagerung unabhängiger ATI-Muster beider Elektronen resultieren. Dies ist in der gezeigten Aufteilung der Fall und lässt entweder auf RESI oder auf einen doppelt angeregten Zwischenzustand mit anschließender sequentieller Ionisation schließen.

2.3.4. Korrelationsmaß nach Zielinski et al.

In Zielinksi et al. (ZMS16) wird ein Korrelationsmaß definiert, welches eine Korrelation beliebiger Observabler der Elektronen untereinander untersucht. Die Frage, ob zwei Observable O_1, O_2 korreliert sind, können wir umformulieren zu: *Wie leicht lässt sich das gemeinsame Spektrum* (O_1, O_2) *als Produkt zweier unabhängiger Verteilungen* O_1, O_2 *schreiben?* Ein 2D-Spektrum, wie beispielsweise in Abb. 2.14, lässt sich als Matrix $N(i;j)$ interpretieren, wobei die Werte der einzelnen Kästchen (englisch: Bins) im Histogramm den Einträgen der Matrix entsprechen. Jede dieser so erhaltenen Matrizen können wir als Summe von Produkten P_a, Q_a schreiben:

$$N(i;j) = \sum_a P_a[i] \cdot Q_a[j]. \tag{2.37}$$

Je weniger dieser Produkte wir benötigen, um $N(i;j)$ zu erzeugen, desto unkorrelierter sind die beiden Verteilungen.
Die sogenannte Singulärwertzerlegung (SVD) ist eine mathematische Operation, die die Zerlegung einer Matrix in der eben angegebenen Weise vornimmt[17]. Dabei müssen die Vektoren $P_a[i], Q_a[i]$ orthonormiert werden. Durch die Normierung erhalten wir

$$N(i;j) = \sum_a P_{a,norm}[i] \cdot Q_{a,norm}[j] \cdot \sigma_a, \tag{2.38}$$

wobei σ_a die jeweiligen Normen sind. Damit können wir nun das Korrelationsmaß C definieren über

$$C \coloneqq \frac{1}{\sum_a^{min(I,J)} \sigma_a^2} \ . \tag{2.39}$$

[17] Für eine symmetrische Matrix $N(i;j) = N(j;i)$ ist $P_a = Q_a$ und die SVD entspricht einer Eigenwertzerlegung.

Falls die Matrix mit nur einem einzigen Produkt aus unabhängigen Verteilungen geschrieben werden kann, also unkorreliert ist, gilt $C = 1$. Je größer C wird, desto korrelierter sind die betrachteten Observablen bis zu einem Wert maximaler Korrelation $C_{max} = min(I, J)$, wenn alle Terme gleich stark beitragen.

2.3.5. Spezialfall: Helium

Die Doppelionisation von Helium stellt einen besonders interessanten Spezialfall dar. Wenn der Anfangszustand bekannt ist und ebenso die Zahl der absorbierten Photonen, ist auch der Endzustand mitsamt Parität exakt bekannt. Das liegt daran, dass neutrales Helium nur zwei gebundene Elektronen besitzt. Diese müssen in einem Doppelionisationsereignis beide emittiert werden. Dadurch ist dieses System als Dreikörperproblem behandelbar und dank heutiger Computerleistung theoretisch zugänglich. Prinzipiell gilt die Doppelionisation von Helium als „Treffpunkt“ für Theorie und Experiment. Jedoch stellen größere Wellenlängen für Theoretiker eine Herausforderung dar, da zum einen ein größeres Gitter für die Stützstellen der Wellenfunktionen bei den numerischen Berechnungen genutzt werden muss und zum anderen durch die höhere Zahl der benötigten Photonen höhere Drehimpulszustände miteinbezogen werden müssen. Das lässt die Rechenzeit der Computer für eine ausreichend genaue Rechnung schnell in die Höhe schießen. Für Ionisation durch wenige Photonen (etwa 2-4) existieren viele Arbeiten, die Doppelionisation theoretisch berechnen. Aber auch für Ionisation durch viele Photonen liefern aktuellste Rechnungen erste Ergebnisse (für eine Wellenlänge von 400 nm siehe etwa (ZMS16) oder (PDT$^+$06)).
Auf der experimentellen Seite stehen Laserpulse mit hohen Intensitäten und sinnvollen Repetitionsraten bei einer Wellenlänge von 800 nm zur Verfügung. Um kürzere Wellenlängen zu erzeugen, werden nichtlineare Prozesse genutzt, die eine Konversionseffizienz deutlich kleiner als eins aufweisen. Erst seit wenigen Jahren existieren Lasersysteme, mit denen auch hohe Intensitäten für eine Wellenlänge von 400 nm erreicht werden können.

Auswahlregeln in der Doppelionisation von Helium

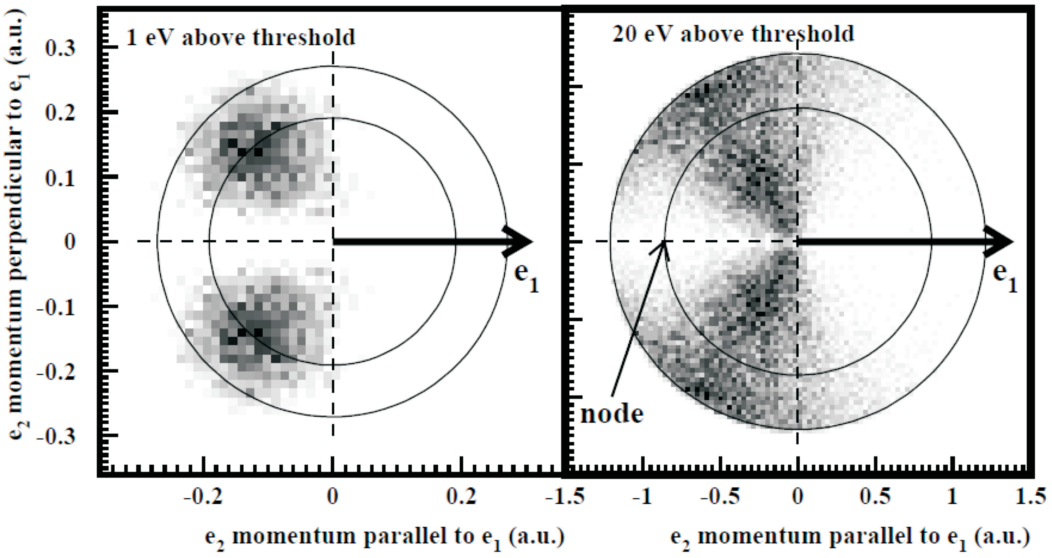


Abbildung 2.15.: Doppelionisation von Helium durch ein Photon. Dargestellt ist der Impuls eines Elektrons e_2, während die Impulsrichtung des anderen Elektrons e_1 festgehalten ist (siehe Pfeil). Der jeweils innere eingezeichnete Kreis repräsentiert „equal energy sharing“, die Impulsbeträge der Elektronen sind also gleich. Die Photonenenergie wurde so gewählt, dass sie (links) 1 eV und (rechts) 20 eV über der Schwelle für Doppelionisation liegt. In beiden Fällen ist eine Nullstelle für Emission der Elektronen „back-to-back“ mit gleichem Impulsbetrag zu sehen. (Entnommen aus (SBMD$^+$99))

Im Fall der Einphotondoppelionisation von Helium im Grundzustand Ψ_G ist der Endzustand Ψ_E exakt bekannt. Aus dem elektronischen Grundzustand $^1S^e$ führt die Absorption eines Photons zum Endzustand $^1P^o$ (MB93). Das Photon addiert zum Drehimpuls 1 $a.u.$ und wandelt somit die Parität von gerade (e) zu ungerade (o). Damit gilt für den Endzustand

$$\Psi_1(\vec{p_1})\Psi_2(\vec{p_2}) = -\Psi_1(-\vec{p_1})\Psi_2(-\vec{p_2}) \ . \tag{2.40}$$

Der Spinzustand ändert sich durch das linear polarisierte Photon nicht und bleibt ein Singlett. Ausnahmslos verlangt das Pauli-Prinzip für fermionische Wellenfunktionen eine antisymmetrische Wellenfunktion bezüglich Vertauschung der Elektronen. Die Symmetrie der Wellenfunktion setzt sich aber aus der Symmetrie des Spinzustandes und der des Impulszustandes zusammen. Im Singlett ist die Spinwellenfunktion antisymmetrisch, daher muss die Impulswellenfunktion symmetrisch sein. Daraus folgt:

$$\Psi(\vec{p}_1, \vec{p}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}}(\Psi_1(\vec{p}_1)\Psi_2(\vec{p}_2) + \Psi_1(\vec{p}_2)\Psi_2(\vec{p}_1)) \ . \tag{2.41}$$

Für den Fall $\vec{p}_1 = -\vec{p}_2$ kann 2.40 in 2.41 eingesetzt werden, was zu $\Psi(\vec{p}_1, \vec{p}_2) = 0$ führt. Damit wird auch die gesamte Zweiteilchenwellenfunktion Null; Eine Emission der beiden Elektronen ist für diesen Fall also nicht erlaubt. Weitere Auswahlregeln sind in den Referenzen (MB93) und (MB95) mitsamt theoretischem Hintergrund zu finden. So ist auch eine Emission beider Elektronen senkrecht zur Polarisationsrichtung $\hat{E}$ verboten.
Der experimentelle Nachweis der Auswahlregel für $\vec{p}_1 = -\vec{p}_2$ ist erstmals Schwarzkopf et al. (SKES93) gelungen. Abb. 2.15 zeigt eine spätere Messung (SBMD$^+$99), in der klare Nullstellen für back-to-back-Emission bei gleichzeitigem „equal energy sharing“ zu sehen sind. Letzteres bedeutet, dass die Gesamtenergie im Kontinuum gleichmäßig auf die beiden Elektronen aufgeteilt wird, sodass deren Impulsbeträge identisch sind.
Erweitern wir die bisherigen Betrachtungen auf den Fall der MPI, können wir etwas kompliziertere Auswahlregeln formulieren. Die theoretischen Arbeiten dazu lieferten Ni et al.[18] (NCRB12). Hier werden vor allem drei Auswahlregeln beschrieben: Der Wirkungsquerschnitt ist Null für die Doppelionisation aus dem Helium-Grundzustand *und* Absorption einer *ungeraden* Anzahl Photonen, wenn mindestens eine der folgenden Bedingungen erfüllt ist:

(A1) $\vec{p}_1 \perp \hat{E}$ und $\vec{p}_2 \perp \hat{E}$.

(A2) $\vec{p}_1 = -\vec{p}_2$.

(A3) $|p_1| = |p_2|$ und gleichzeitig $\Theta_1 = \pi - \Theta_2$. Θ ist der Winkel zwischen Polarisationsachse und Impulsvektor.

Zur Überprüfung dieser Vorhersagen ist ein Zählen der absorbierten Photonen unabdingbar. Dies ist erst möglich geworden durch die Beobachtung der Energiequantisierung in der Doppelionisation (HWT$^+$13).

2.4. Bereits durchgeführte Experimente

In dieser Arbeit soll die nichtsequentielle Doppelionisation von Helium und Neon bei einer Wellenlänge von 400 nm untersucht werden. Dazu lohnt es sich, verwandte und bereits veröffentlichte Experimente zu rekapitulieren.
Als experimenteller Auftakt der intensiven Erforschung der NSDI kann die Arbeit von Walker et al. aus dem Jahre 1994 (WSD$^+$94) gesehen werden. Ihnen gelang es, das He^{2+}/He^+-Verhältnis für ein großes Intensitätsintervall und 800 nm-Pulse genau zu bestimmen und

[18] Frühere theoretische Arbeiten von Becker et al. (BF94) zeigten schon 1994 Nullstellen im Phasenraum, die abhängig von der Zahl absorbierter Photonen auftauchten.

durch die Entdeckung eines Plateaus (siehe Kap. 2.3) theoretische und experimentelle Anstrengungen anzustoßen. Vier Jahre später konnten Larochelle et al. (LAC98) die gleiche Plateauform im Ne^{2+}/Ne^{+}-Verhältnis und damit NSDI auch für diese atomare Spezies beobachten.
Weber et al.(WWS^{+}00) konnten bei der Messung von He^{2+}-Ionenimpulsen bei Intensitäten von $2,9 - 6,6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ und einer Wellenlänge von 800 nm die Entwicklung einer klaren Doppelpeakstruktur für steigende Intensitäten erkennen und interpretierten das als ein Zeichen für nichtsequentielle Doppelionisation. Zum gleichen Schluss kamen Moshammer et al.(MFS^{+}00), die Ne^{2+}-Ionenimpulse bei einer Wellenlänge von 800 nm und $I = 1 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$ gemessen und ebenso eine Doppelpeakverteilung identifiziert haben. Anfang 2001 führten Lafon et al. (LCS^{+}01) die Untersuchung von Helium voran: Erstmals wurden Elektronenenergiespektren in Koinzidenz mit einem He^{2+}-Ion gemessen. Abermals nutzten die Autoren 780 nm-Pulse und betrachteten die Intensitäten $4 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ sowie $8 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$. Die gemessenen Elektronenenergien waren ein weiterer Hinweis auf die Richtigkeit des Rückstreumodells. Außerdem wurde die Bedeutung der Rückwärtsstreuung des ersten Elektrons nach dem Elektron-Elektron Stoß hervorgehoben, welche zu Elektronenenergien (in a.u.) von bis zu $10U_p$ führen kann. Nur kurze Zeit später veröffentlichten Chaloupka et al. (CLD^{+}01) Elektronenenergiespektren koinzident mit der Messung zweifach geladener Atome mehrerer Edelgas-Spezies. Bei Helium, Neon, Argon, Krypton und Xenon konnte jeweils Rückstreuung als Doppelionisationsprozess identifiziert werden. 2003 gelang Eremina et al. (ELR^{+}03) eine weitere Messung von Ne^{2+}- und Ar^{2+}-Ionen an der Schwelle der direkten Stoßdoppelionisation bei $2,4 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$. Zum einen schien bei der Neon-Doppelionisation direkt über dieser Schwelle sofort direkte Stoßdoppelionisation zu dominieren, auch zu viel höheren Intensitäten hin (Vergleich mit (MFS^{+}00)). Zum anderen wurde ein Mechanismus vorgeschlagen, bei dem auch unter der Schwelle direkte Stoßdoppelionisation stattfinden kann: Während der Rückstreuung können zusätzliche Photonen vom Feld aufgenommen werden, um die fehlende Energie bereitzustellen und zu einer gleichzeitigen Emission beider Elektronen zu führen.
Eine Untersuchung verschiedener Intensitäten lieferten de Jesus et al. in Ref. (JFZ^{+}04) an den Atomen Helium, Neon und Argon bei einer Wellenlänge von 800 nm. Die Ionenimpulse parallel zur Polarisationsrichtung wurden für He^{2+}-Ionen und Intensitäten von $0,6 - 1,25 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$ bzw. Ne^{2+}-Ionen und $0,4 - 1,0 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$ gemessen und miteinander verglichen. Neon verhält sich dabei signifikant anders als Helium, da der Wirkungsquerschnitt für Ionisation bei Neon schnell über den der Anregung ansteigt (siehe Abb.2.16). Für alle NSDI-Intensitäten und betrachteten Spezies konnte jedoch eine Doppelpeakstruktur beobachtet werden, was erneut im Einklang mit einem Rückstreuschritt steht.

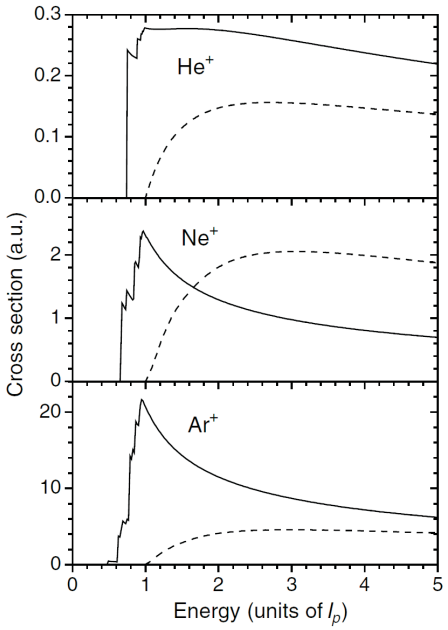


Abbildung 2.16.: Wirkungsquerschnitte bei Elektronenstoß auf He^+, Ne^+ und Ar^+. Durchgezogene Linien kennzeichnen Anregung, gestrichelte Linien Ionisation. (Entnommen aus (JFZ+04))

Im gleichen Jahr veröffentlichten Weckenbrock et al. (WZS+04) eine detaillierte Studie zur Korrelation der Elektronen aus Doppelionisation von Neon bei einer Wellenlänge von 800 nm und $I = 1,9 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$. Hierbei wurden erstmals auch die zur Polarisation senkrechten Komponenten der Elektronenimpulse betrachtet. Die Autoren konnten eine verstärkte Emission der Elektronen in die gleiche Richtung beobachten, wie sie beim (e,2e)-Stoß üblich ist. Für diesen Fall wurde außerdem in der Impulskomponente senkrecht zur Laserpolarisation eine deutliche Abstoßung der beiden Elektronen beobachtet, was bei back-to-back-Emission nicht der Fall war. Das spricht für eine gleichzeitige Emission der Elektronen und anschließende Coulomb-Abstoßung.
Einen kleinen Durchbruch schafften Parker et al. (PDT+06) im Jahr 2006, die erstmals Doppelionisation bei einer Wellenlänge von 390 nm herbeiführten. Sie konnten in Koinzidenz zu einem He^{2+}-Ion den Impuls eines der beiden emittierten Elektronen messen. Dabei nutzten sie die Intensitäten $8 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ sowie $1,1 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$, beide unterhalb der Schwelle für direkte Stoßdoppelionisation. Es waren keinerlei Maxima in den Energiespektren zu erkennen, jedoch passten die gemessenen Cutoffs zu den theoretisch vorhergesagten. Ein Vergleich zwischen Ionenimpulsen im NSDI- und SDI-Regime ist in Ref. (ZRE+06) von Zrost et al. zu finden. Dort sind Ne^{2+}-Impulse nach Doppelionisation bei $1,5 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$ und $2,0 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$ und einer Wellenlänge von 795 nm dargestellt. Bei der niedrigeren Intensität ist noch eine Doppelpeakverteilung erkennbar; die höhere Intensität erzeugt nur noch ein Maximum und zeigt damit SDI-Charakter.

In derselben Ausgabe des Physical Review Letters erschienen 2007 zwei Veröffentlichungen zur Doppelionisation von Helium: Staudte et al. (SRS$^+$07) zeigten die korrelierten Elektronenimpulse parallel zur Polarisationsrichtung des Feldes nach Doppelionisation durch 800 nm-Pulse bei einer Intensität von $4,5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$. Sie beobachteten eine V-artige Struktur im gemeinsamen Impulsspektrum der Elektronen. Diese ist scheinbar das Resultat aus direkter Stoßdoppelionisation und anschließender Rückstreuung des stoßenden Elektrons am Ion. Eine ähnliche V-Struktur sahen auch Rudenko et al. (RJE$^+$07) bei gleichen Bedingungen - abgesehen von einer höheren Intensität von $1,5 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$. Da sie zusätzlich auch die zur Polarisation senkrechte Impulskomponente gemessen hatten, konnten sie die V-Struktur in ihrem Experiment auf die Elektron-Elektron Abstoßung zurückführen.
Nur ein Jahr später untersuchten abermals Rudenko et al. (REZ$^+$08) die Doppelionisation von Ar und Ne durch 800 nm-Laserpulse. Sie erweiterten die Beobachtungen von Zrost et al. und zeigten kleinschrittig Ne^{2+}-Ionenimpulse für mehrere Intensitäten von $0,25 - 2,0 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$. Im NSDI-Regime tauchten für Neon bei jeder Intensität Doppelpeaks auf. Das bedeutet, dass kaum Elektronen back-to-back emittiert werden, was scheinbar abhängig von der Spezies ist, da für Argon oftmals eine Dreipeakverteilung beobachtet wurde. Im gleichen Jahr zeigten Alnaser et al. (ACH$^+$08) Ionenimpulsspektren für die Doppelionisation von Neon bei verschiedenen Wellenlängen. Bei 1313 nm, $5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ und 800 nm, $5,0 - 7,5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ konnten wieder Doppelpeaks beobachtet werden. Bei einer Wellenlänge von 483 nm und $7,5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ist jedoch nur ein Maximum zu sehen. Bei den niedrigeren Intensitäten $2,5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ und $5,0 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ verwäscht dieses Maximum etwas und wird breiter.
Seitdem folgten zwar weitere wichtige neue Entdeckungen zur Starkfeld-Doppelionisation. Im Rahmen der Aufzählung experimenteller Arbeiten sollen hier aber nur jene behandelt werden, die direkt die Doppelionisation von Helium oder Neon behandeln. Die wichtigsten, die vorliegende Arbeit betreffenden Schlussfolgerungen und Erkenntnisse anderer Experimente, wurden vor diesem Abschnitt bereits im restlichen Kapitel behandelt.
Bei der Aufzählung fällt auf, dass zum aktuellen Zeitpunkt noch keine kinematisch vollständigen experimentellen Daten zur Doppelionisation von Helium und Neon bei einer Wellenlänge von 400 nm vorliegen. Entweder wurden bisher nur die Ionenimpulse, eines der beiden Elektronen oder die Ionisation bei einer Wellenlänge von 800 nm betrachtet. Außerdem fehlt eine Untersuchung der verschiedenen vorgeschlagenen Mechanismen zur nichtsequentiellen Doppelionisation bei verschiedenen Intensitäten gänzlich. Insbesondere konnten ATI-Strukturen in der Doppelionisation von Helium bisher noch niemals nachgewiesen werden. Entsprechend fehlt auch die experimentelle Überprüfung der Auswahlregeln. In diesen experimentell unerforschten Raum soll in der vorliegenden Arbeit vorgestoßen werden.

3. Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel werden die wichtigsten experimentellen Bestandteile des verwendeten Aufbaus behandelt, der sowohl in der Frankfurter Arbeitsgruppe als auch bereits in vielen anderen Arbeitsgruppen weltweit aus einer Art Standardbausatz besteht und je nach Anforderungen modifiziert wird. Die Standardbauteile dieses als COLTRIMS („Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy“) bekannten Systems werden soweit erläutert, wie sie zum Verständnis des Experiments und zu dessen Auswertung beitragen, wohingegen auf die spezifischen Modifizierungen im vorliegenden Fall etwas näher eingegangen werden soll. Begonnen wird nach kurzen einleitenden Worten mit dem Aufbau des Lasersystems.

3.1. Übersicht

Zunächst werfen wir einen Blick auf eine Übersicht über das Experiment in Abb. 3.1. Ein kommerziell erwerbbares System erzeugt kurze Laserpulse bei einer zentralen Wellenlänge von 800 nm mit einer Repetitionsrate von 100 kHz. In einem doppelbrechenden Kristall (hier: Beta-Bariumborat) wird im Anschluss die Wellenlänge in 400 nm umgewandelt, was aufgrund der Konversionseffizienz $\eta < 1$ zu einem Leistungsverlust führt. Die so entstandenen Pulse kreuzen dann innerhalb einer COLTRIMS-Kammer in Ultrahochvakuum einen präparierten Gasstrahl, wo die Ionisation stattfindet. Deren Fragmente werden mit speziellen ortssensitiven Detektoren (einer für negativ geladene Teilchen und einer für positiv geladene)[1] nachgewiesen und die gesammelten Rohdaten nach elektronischer Verarbeitung in sogenannten List-Mode-Files (LMFs) gespeichert. Diese können anschließend nachträglich ausgewertet werden.

Laborkoordinatensystem

Um eine bessere Anschauung des Experiments zu liefern und für die folgenden Ausführungen klare Richtungsangaben möglich zu machen, wird in Abb. 3.2 das Laborkoordinatensystem definiert. Im linkshändigen Koordinatensystem mit den Achsen x, y, z entsprechen die x-Achse der Propagationsrichtung des Lasers und die y-Achse dem Geschwindigkeitsvektor der Atome im Gasstrahl. Die positive z-Achse zeigt in Richtung des Ionendetektors und repräsentiert damit die „Flugzeitrichtung“ der Teilchen bzw. die Spektrometerachse. Im Koordinatenursprung befindet sich der Überlapp zwischen Laser und Gasstrahl und somit der Ort der Ionisation.

[1] In Abb. 3.1 wären die beiden Detektoren jeweils oberhalb und unterhalb der Zeichenebene in Höhe des Überlapps zwischen Jet und Laserfokus orientiert (siehe Abb. 3.2).

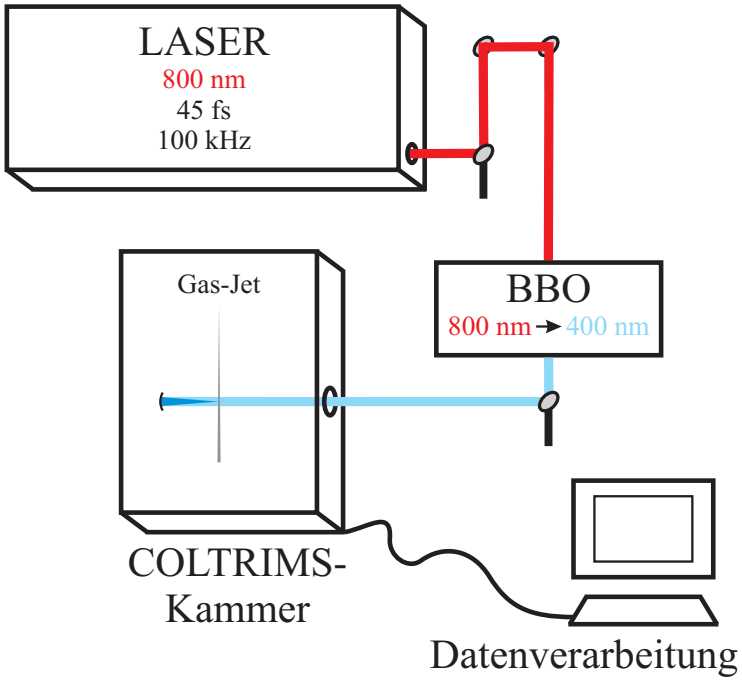


Abbildung 3.1.: Übersicht über das Experiment. Die Wellenlänge eines kommerziell erhältlichen, gepulsten Lasers wird mit Hilfe eines doppelbrechenden Kristalls (BBO) von 800 nm auf 400 nm halbiert. Anschließend werden die Laserpulse innerhalb einer COLTRIMS-Apparatur fokussiert und mit einem Gasstrahl in Überlapp gebracht. In diesem Überlappvolumen finden die untersuchten Ionisationsereignisse statt, die mit Detektoren in der Apparatur nachgewiesen und deren Messdaten nach elektronischer Verarbeitung gespeichert werden.

3.2. Laser

Die Erzeugung ultrakurzer Laserpulse ist aktuell selbst noch Gegenstand intensiver Forschung. Im Bereich von Femtosekundenpulsdauern und rund 800 nm Trägerwellenlänge existieren jedoch schon einige kommerziell erwerbbare Lasersysteme auf dem Markt. Eines dieser Systeme ist der Wyvern-500^{TM} der Firma Kapteyn-Murnane Laboratories Inc., der für die folgenden Experimente verwendet wurde. Er liefert 45 fs-Pulse bei zentraler Wellenlänge von etwa 790 nm mit einer Repititionsrate von 100 kHz. Dabei können Pulsenergien von bis zu 100 μJ erzeugt werden. Technische Daten und Details im folgenden Abschnitt stammen zumeist aus dem Handbuch (KML09).
Prinzipiell werden im sogenannten Oszillator zunächst in einem Titan-Saphir-Kristall kurze Pulse mit einer Rate von 78 MHz produziert, die nur eine Energie von $2,5$ nJ aufweisen. Im folgenden Verstärker durchlaufen einige dieser Pulse einen weiteren Kristall, in dem sie dann die endgültige Energie erhalten.

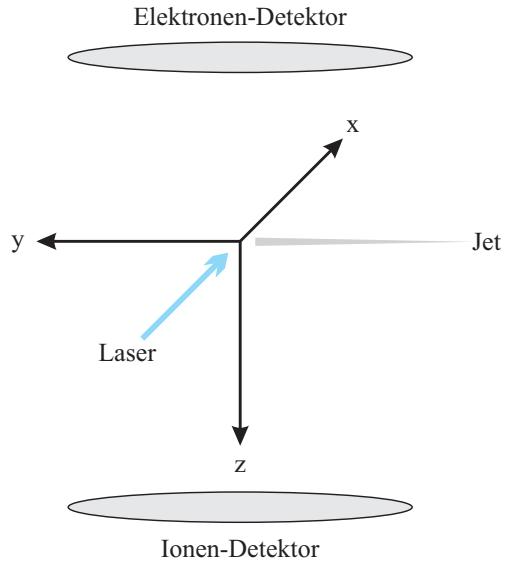


Abbildung 3.2.: Definition des linkshändigen Laborkoordinatensystems. Die Laserpulse propagieren in positiver x-Richtung, die Gasatome im Jet in positiver y-Richtung. Die z-Achse repräsentiert die Flugzeitrichtung im Spektrometer bzw. die Spektrometerachse. Das Schema entspricht einem Blick von rechts auf die COLTRIMS-Kammer in Abb. 3.1.

3.2.1. Oszillator

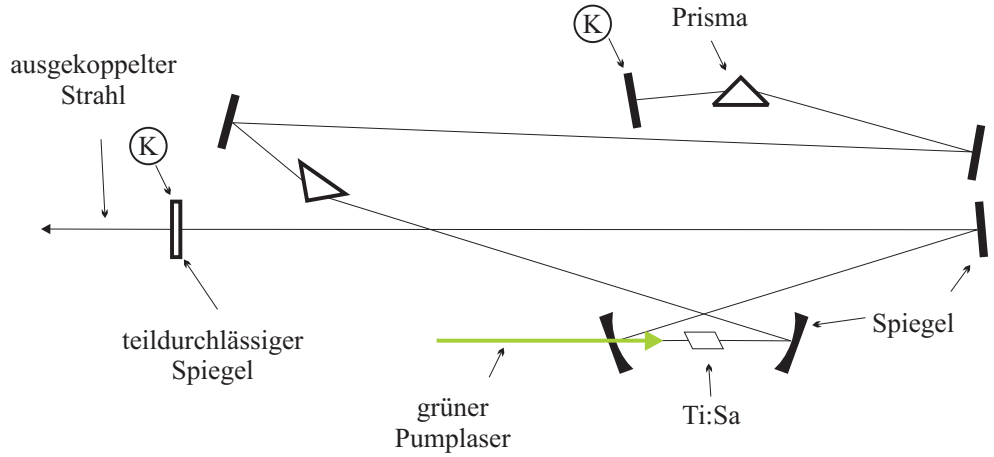


Abbildung 3.3.: Skizze des Oszillators im Wyvern-500^{TM}. Die mit „K“ markierten Spiegel legen die Länge der Kavität fest.

Abb. 3.3 zeigt die optischen Bauteile im Oszillator des Lasersystems. Das aktive Medium stellt das zentrale Bauteil eines jeden Lasers dar und ist im vorliegenden Fall ein Titan-Saphir-Kristall. Hier findet das sogenannte Lasing statt, welches zur Emission kohärenter Photonen führt.

Lasing

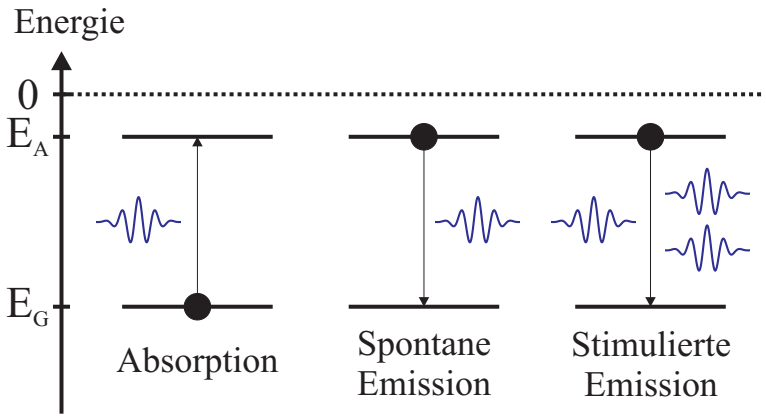


Abbildung 3.4.: Darstellung verschiedener Wechselwirkungen von Licht mit gebundenen Elektronen. (Links) Absorption: Ein Photon mit der Energie des Übergangs zwischen zwei Zuständen wird absorbiert, wobei ein Elektron in einen energetisch höheren Zustand übergeht. (Mitte) Spontane Emission: Ein Elektron geht von einem energetisch höheren in einen niedrigeren Zustand über und emittiert dabei ein Photon mit der Differenzenergie beider Zustände. (Rechts) Stimulierte Emission: Ein Photon, welches die Übergangsenergie zwischen zwei Zuständen trägt, kann ein Elektron, das den höheren der beiden Zustände besetzt, zur Emission eines identischen Photons anregen.

Grundlage des „Lasings“ sind die in Abb. 3.4 dargestellten Prozesse gebundener Elektronen mit Photonen. Links wird ein Photon absorbiert, wodurch ein gebundenes Elektron im Zustand Ψ_G in einen angeregten Zustand Ψ_A übergeht. Dieser Effekt kann nur auftreten, wenn die Energie, die das Photon trägt, der Differenzenergie $E_{G\to A}$ der Zustände Ψ_G und Ψ_A entspricht. Auch der zeitumgekehrte Fall kann eintreten (Mitte): Ein bereits angeregtes Elektron im Zustand Ψ_A relaxiert spontan in den energetisch günstigeren Zustand Ψ_G und emittiert dabei ein Photon mit $\hbar\omega = E_{G\to A}$.
Die stimulierte Emission (rechts) setzt ebenso ein Elektron im angeregten Zustand voraus. Der Übergang in den Zustand Ψ_G erfolgt hierbei jedoch nicht spontan; er wird durch ein Photon der Energie $E_{G\to A}$ induziert. In der Folge entsteht ein zweites Photon, welches mit dem ersten identisch ist in Propagationsrichtung, Phase und Energie. Die stimulierte

Emission nutzt dabei aus, dass spontane Emission nicht sofort nach der Anregung auftritt, sondern eine charakteristische Zeit benötigt, die mit der Linienbreite des Übergangs zusammenhängt: Diese endliche Lebensdauer τ ist über die Heisenberg'sche Unschärferelation mit der energetischen Linienbreite ΔE des Übergangs verknüpft: $\tau \cdot \Delta E = \hbar/2$. Je länger die Lebensdauer, desto besser lässt sich stimulierte Emission herbeiführen.

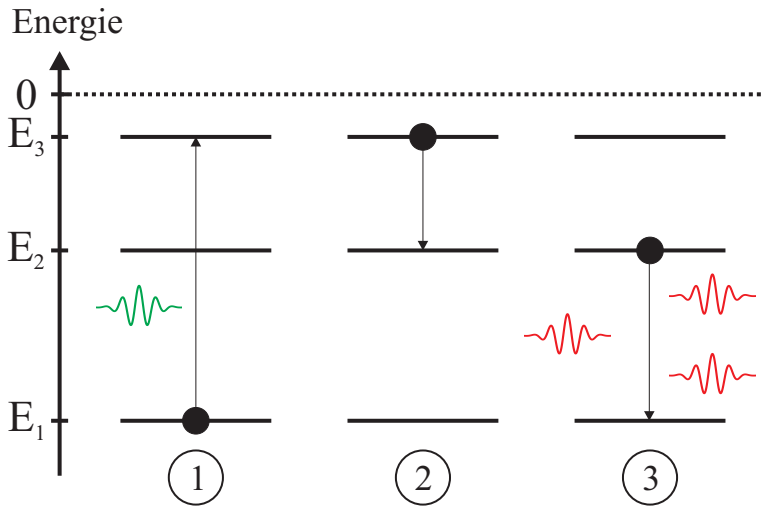


Abbildung 3.5.: Lasing im Dreiniveausystem. In *Schritt 1* werden Elektronen im aktiven Medium durch einen grünen Pumplaser aus Zustand Ψ_1 in Ψ_3 angehoben. Anschließend relaxieren diese über spontane Emission im *Schritt 2* in Ψ_2. In *Schritt 3* kommt es dann zur stimulierten Emission.

Das Prinzip eines Lasers besteht nun darin, durch stimulierte Emission im aktiven Medium möglichst viele identische Photonen zu erzeugen. Allerdings sind dafür viele Elektronen im angeregten Zustand notwendig, weshalb das aktive Medium durch Hinzufügen von Energie „gepumpt" wird. Beim Wyvern-500^{TM} geschieht das durch einen frequenzverdoppelten Nd-YAG-Pumplaser im grünen Frequenzbereich (532 nm). Die Photonenenergie des Pumplasers entspricht der Übergangsenergie von Zustand Ψ_1 in einen angeregten Zustand Ψ_3 (siehe Abb. 3.5) und sorgt durch Absorption für eine Besetzung von Ψ_3. Allerdings kann das Verhältnis $N(\Psi_3)/N(\Psi_1)$ der Besetzungen N dieser Zustände durch Pumpen niemals größer als eins werden. Das liegt an der Konkurrenz von Absorption und stimulierter Emission, die gegenläufige Effekte haben. Während Absorption ein Elektron zu $N(\Psi_3)$ hinzufügt, zwingt stimulierte Emission ein Elektron, aus Ψ_3 in Ψ_1 zu relaxieren. Da beide Effekte identische Wirkungsquerschnitte haben, werden für den Fall von $N(\Psi_3)/N(\Psi_1) = 1$ durch viele eintreffende Photonen im Mittel die gleiche Anzahl Elektronen zu Ψ_3 hinzugefügt wie daraus entfernt. Eine Besetzungsinversion ($N(\Psi_3) > N(\Psi_1)$) ist daher nicht möglich. Die stimulierte Emission mit Hilfe des Übergangs $\Psi_3 \rightarrow \Psi_1$ ist für Energiezuführung zum Laserstrahl folglich ebenso wenig geeignet. Denn ohne Besetzungsinversion ist hier mit

ähnlicher Begründung durch stimulierte Emission kein effektives Hinzufügen von Photonen zum Strahl möglich, da die Absorption dem entgegenwirkt.
Aus diesem Grund werden mindestens drei Niveaus benötigt, wie in Abb. 3.5 zu sehen ist. Der Zustand Ψ_2 wird so gewählt, dass der Übergang $\Psi_3 \rightarrow \Psi_2$ durch spontane Emission möglichst schnell abläuft. Dadurch wird eine Besetzungsinversion zwischen Ψ_1 und Ψ_2 erreicht, die einen effektiven Lawineneffekt eintreffender Photonen ermöglicht. Eingeleitet wird diese Lawine durch ein Photon aus spontaner Emission, welches zufällig in Richtung der Spiegel emittiert wird und dann in der Kavität zwischen den in Abb. 3.3 mit „K“ markierten Spiegeln gefangen ist. Betrachten wir diese Kavität im Wellenbild des Lichts, können bei gegebener Länge L der Kavität nur bestimmte Wellenlängen eine stehende Welle bilden. Diese „Moden“ der Kavität gehorchen der Gleichung

$$\lambda = \frac{2L}{n} \ , \tag{3.1}$$

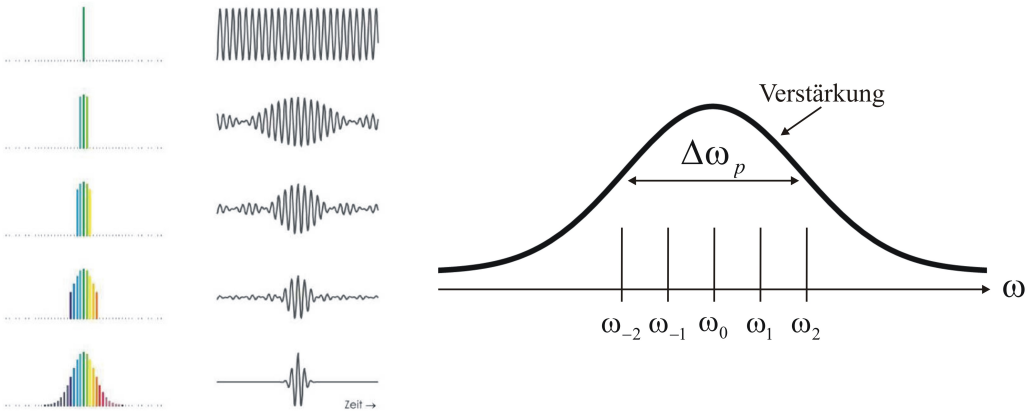


Abbildung 3.6.: (Links) Zusammenhang zwischen spektraler Breite und zeitlicher Länge von Laserpulsen (Tho10). (Rechts) Darstellung der Verstärkung mehrerer Moden (Frequenzregime) im aktiven Medium (angelehnt an (Gri11)).

wobei n eine positive, ganze Zahl ist. Nur die Moden, deren Wellenlänge innerhalb der Linienbreite das Lasingüberganges liegen, werden vom aktiven Medium verstärkt (siehe Abb. 3.6, rechts). Je mehr Moden verstärkt werden und je größer damit die spektrale Breite des Lasers ist, desto kürzer werden die Pulse (siehe Abb. 3.6, links). Anschaulich kann das mit einer Schwebung durch Überlagerung vieler verschiedener Wellenlängen verstanden werden. Nur nach ganz bestimmten, periodisch wiederkehrenden Zeiten $t_{Periode} = 2L/c$ haben alle

spektralen Anteile gleichzeitig ein Maximum. Zu allen anderen Zeiten interferieren die Wellen zumeist destruktiv. Mathematisch kann dieser Effekt durch eine Fouriertransformation ausgedrückt werden:

$$f(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu \cdot exp(i2\pi\nu t)F(\nu) \ . \tag{3.2}$$

ν ist die Frequenz der Lichtwelle, $F(\nu)$ die Frequenzverteilung des Lichts und $f(t)$ die Einhüllende des sich ergebenden Pulses. Eine einzelne Frequenz im Spektrum führt also zu einer CW-Mode. Für endliche spektrale Breiten $\Delta\omega_p$ mit $\omega_p = 2\pi\nu$ können wir eine kürzeste Pulsdauer τ_p definieren (DR06)

$$\tau_p = \frac{2\pi c_b}{\Delta\omega_p} \ . \tag{3.3}$$

Die Pulsdauer τ_p gibt die FWHM („**F**ull **W**idth at **H**alf **M**aximum“) der Laserintensität in der Zeitdomäne an, die spektrale Breite $\Delta\omega_p$ die FWHM der Intensität in der Frequenzdomäne. c_b ist eine Konstante und für verschiedene Pulsformen unterschiedlich; für Gauß-Pulse ist $c_b = 0,441$.
Um möglichst kurze Pulse zu erreichen, benötigt man also breite Frequenzprofile. Die Besonderheit am Titan-Saphir-Laser ist dessen breites Verstärkungsspektrum. Wellenlängen zwischen $670 - 1070\ nm$ können verstärkt werden (Fro07), was mit Glg. 3.3 zu theoretisch denkbaren Pulsdauern von $5\ fs$ führt. Allerdings dürfte dazu keine wellenlängenabhängige Phase (Chirp) auftreten und alle Dispersionseffekte müssten perfekt kompensiert werden. Beispielsweise führt die Propagation durch den Kristall zu einer positiven Dispersion, kurzwellige Anteile sind dadurch langsamer als langwellige. Um das näherungsweise auszugleichen, werden Prismen in den Oszillator eingebracht (siehe Abb. 3.3), die negative Dispersion induzieren. Dennoch werden am Ende des Oszillators „nur“ Pulsdauern von etwa $15\ fs$ und eine spektrale Breite von $60 - 65\ nm$ erreicht.

Kerr-Modelocking

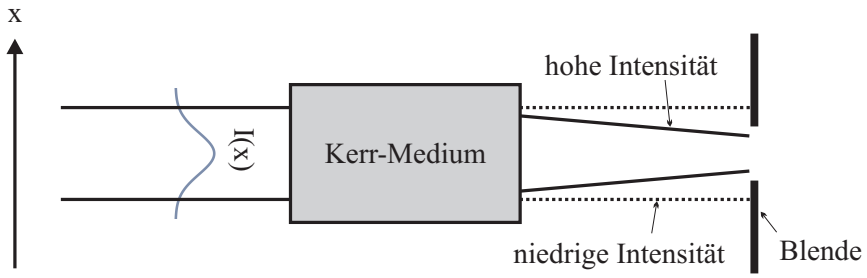


Abbildung 3.7.: Auswirkungen einer Kerr-Linse. Zufällig phasengleiche hohe Intensitäten werden fokussiert und niedrige Intensitäten durch eine Blende entfernt.

Innerhalb der Kavität schwingen also verschiedene Moden und werden im Kristall verstärkt. Aber nur, wenn alle Moden in Phase schwingen - wir sprechen dann von „Modelocking“ -, können kurze Pulse entstehen. Wie also wird das technisch gewährleistet?
Im Wyvern-500^{TM} verwendet man das sogenannte Kerr-Modelocking. Dabei handelt es sich um einen passiven Mechanismus, der die Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex ausnutzt. Für hohe Intensitäten ($> 10^{14} \frac{W}{cm^2}$) ist der Brechungsindex nämlich eine Funktion der Intensität

$$n(I) = n_0 + n_2 \cdot I \ . \tag{3.4}$$

Da die Intensitätsverteilung transversal einer Gauß-Funktion entspricht, gilt dies somit auch für den Brechungsindex in einem Material. Im aktiven Medium selbst entsteht daher ein vom Ort abhängiger Phasenversatz, der dem einer fokussierenden Linse entspricht. Erreicht die Intensität also die nichtlineare Schwelle, indem zufällig alle Moden in Phase schwingen, werden diese phasengleichen Anteile fokussiert. Durch Einbringung einer Lochblende hinter dem Kristall werden diese zufällig phasengleichen Anteile gegenüber nicht fokussierten Anteilen verstärkt (siehe Abb. 3.7). Dadurch stellt sich Phasengleichheit automatisch ein, da die zufällig hohen Intensitäten in jedem Durchlauf gegenüber den nicht phasengleichen Anteilen bevorzugt werden.

3.2.2. Verstärker

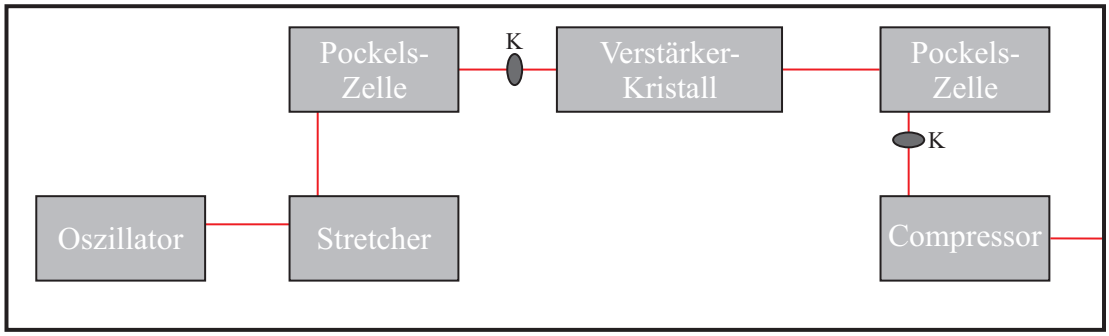


Abbildung 3.8.: Schematischer Aufbau des gesamten Lasersystems mit Oszillator und Verstärker. Die mit „K“ markierten Spiegel bilden die Kavität des regenerativen Verstärkers.

Um möglichst hohe Intensitäten zu erreichen, müssen die vergleichsweise schwachen Pulse nach dem Oszillator verstärkt werden. Dabei stößt man schnell an die Zerstörschwelle der optischen Elemente - insbesondere des Kristalls - durch zu hohe Intensitäten. Um dieses Problem zu umgehen, werden die Pulse in einem „Stretcher“ zeitlich gestreckt, indem das Licht mit Hilfe eines Gitters spektral aufgespalten wird und anschließend kleinere Wellenlängen einen längeren Weg zurücklegen als größere. Dadurch erzeugt man einen positiven „Chirp“[2], der die Pulsdauer deutlich verlängert und damit die Peakintensität signifikant abschwächt. Im Wyvern-500^{TM} wird anschließend ein regenerativer Verstärker verwendet. Hierbei wird das aktive Medium durch einen gepulsten, grünen Laser gepumpt und ein gestreckter Laserpuls aus dem Oszillator für eine festgelegte Zeit in einer Kavität propagiert, während er mit Hilfe der Besetzungsinversion Energie gewinnt. Die Laserpulse des Pumplasers sind vergleichsweise lang und die erzeugte Besetzungsinversion reicht nicht aus, um bei einer Rate von 78 MHz jeden Puls ausreichend zu verstärken. Daher werden nur einige Pulse - hier mit einer Rate von 100 kHz - durch eine Pockels-Zelle ausgewählt und in die Kavität des regenerativen Verstärkers gespeist.
Die Pockels-Zelle ist ein elektro-optischer Modulator, der gezielt die Polarisation bestimmter Pulse dreht, sodass nur diese einen anschließend positionierten Polarisationsfilter passieren können. Danach sind diese Pulse für mehrere Umläufe (typischerweise 20-40) in der Kavität gefangen und werden verstärkt, bevor eine Pockels-Zelle ihre Polarisation nochmals dreht und sie dadurch die Kavität verlassen. Anschließend werden sie mit Hilfe eines Kompressors zeitlich wieder komprimiert, indem durch den erneuten Einsatz eines Gitters ein negativer Chirp induziert wird. Ein Überblick über den gesamten Aufbau ist in Abb. 3.8 zu sehen.

[2]Chirp (englisch für Zwitschern) ist die Bezeichnung für eine zeitabhängige Frequenz. Positiv wird ein Chirp genannt, bei dem die Frequenz mit zunehmender Zeit ebenfalls zunimmt.

Die Pulse verlassen den Verstärker mit einer Pulsdauer von 45 fs, einer spektralen Breite von etwa 30 nm und einer maximalen Pulsenergie bis 100 μJ.

3.2.3. SHG im BBO

Der Wyvern-500^{TM} erzeugt ausschließlich Laserpulse mit einer Trägerwellenlänge von etwa 800 nm. Um diese in 400 nm-Pulse zu konvertieren, wird ein doppelbrechender Kristall genutzt: Beta-Barium-Borat (BBO). In diesem Kristall findet die sogenannte Second-Harmonic-Generation (SHG) statt.
Dieser Effekt der nichtlinearen Optik hat seinen Ursprung in der Polarisation von Materialien bei hohen Intensitäten. Die Taylor-Entwicklung der Polarisation liefert

$$\frac{1}{\epsilon_0}\vec{P}(\vec{E}) = \chi_1 \cdot \vec{E} + \chi_2 \cdot \vec{E}^2 + \dots \,, \tag{3.5}$$

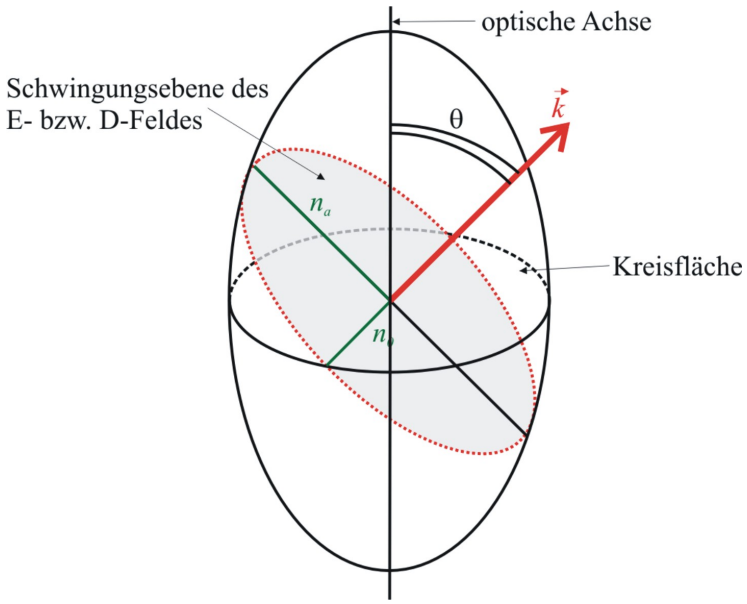


Abbildung 3.9.: Brechungsindizes verschieden polarisierter Wellen in einem doppelbrechenden Kristall in Abhängigkeit von der Ausbreitungsrichtung. Die optische Achse ist die Richtung, in der gleiche Wellenlängen verschiedener Polarisation gleiche Brechungsindizes erfahren. (Wik16)

wobei $\vec{E}$ das treibende elektrische Feld ist, $\vec{P}$ die resultierende Polarisation des Materials und χ_1, χ_2 die Suszeptibilitäten erster bzw. zweiter Ordnung. Im linearen Fall kann jeder Term außer dem ersten vernachlässigt werden und wir erhalten das bekannte $\vec{P}(\vec{E}) = \chi_1 \epsilon_0 \cdot \vec{E}$.

Bei höheren Intensitäten müssen jedoch auch Terme höherer Ordnung berücksichtigt werden. Der quadratische Term zweiter Ordnung führt dabei zur Entstehung neuer Frequenzkomponenten, wie im Folgenden leicht nachvollziebar ist (Tho10): Fassen wir eine eintreffende elektromagnetische Welle als eine Überlagerung zweier identischer E-Felder auf

$$\vec{E}_{ges} = \vec{E}_1(t) \cdot exp(i\omega_1 t) + \vec{E}_1(t) \cdot exp(i\omega_1 t) + \vec{E}_1^*(t) \cdot exp(-i\omega_1 t) + \vec{E}_1^*(t) \cdot exp(-i\omega_1 t) \ ,$$

liefert der quadratische Term aus Glg. 3.5 unter anderem einen Mischterm

$$\vec{P}_{zweiteOrdnung} = \epsilon_0 \chi_2 2\vec{E}_1(t)^2 \cdot exp(i \cdot 2\omega_1 \cdot t) + ... \ .$$

Die nichtlineare Polarisation führt also zur Erzeugung einer Welle mit der doppelten Frequenz der eintreffenden Welle - zur SHG. Warum aber wird dafür ein doppelbrechender Kristall benötigt?

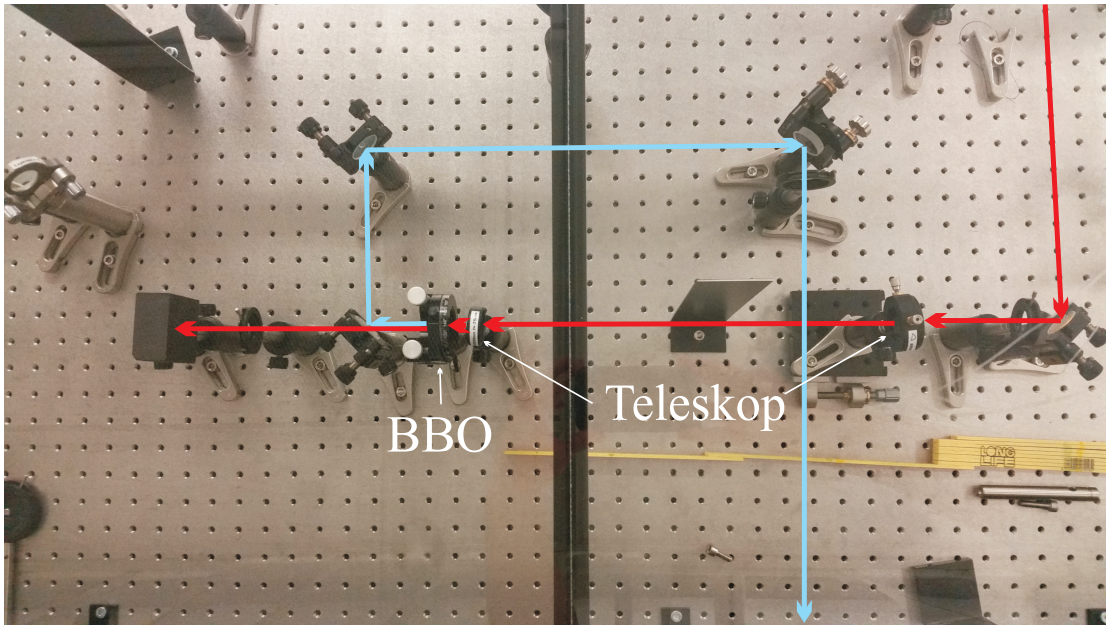


Abbildung 3.10.: Fotografie des Aufbaus der SHG-Erzeugung. Das Teleskop wird verwendet, um den Strahldurchmesser zu verkleinern und dadurch eine höhere Konversionseffizienz im BBO zu erreichen. Nach dem BBO werden nur noch Spiegel verwendet, die eine Wellenlänge von 400 nm reflektieren, von 800 nm hingegen nicht.

Der Grund liegt in den unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeiten der eintreffenden Welle und der Polarisationswelle im Medium. Im Allgemeinen hängt der Brechungsindex von der Wellenlänge ab $n = n(\lambda)$, was bei positiv dispersiven nicht doppelbrechenden Medien dazu führt, dass sich kleinere Wellenlängen in ihnen langsamer ausbreiten als größere. Die fundamentale Welle läuft der zweiten Harmonischen daher immer weiter voraus, was einem linearen Phasenversatz $\Delta\phi(z)$ in Abhängigkeit der Ausbreitungsstrecke z entspricht. Jedoch führt die Fundamentale überall auf ihrem Weg durch das Medium zu SHG. Da aber am Ort der Entstehung z für alle vorher erzeugten zweiten Harmonischen im

Allgemeinen $\Delta\phi \neq 0$ gilt, löschen sich die einzelnen entstehenden Wellen destruktiv aus. Nur, wenn annähernd $n(\omega_1) = n(\omega_2)$ gegeben ist, interferieren alle entstehenden zweiten Harmonischen konstruktiv und es kann zu effektiver SHG kommen.
Dies kann ausschließlich in doppelbrechenden Medien erreicht werden. Hier existieren zwei orthogonale Achsen, deren Brechungsindizes für parallel zu ihnen polarisierte Wellen unterschiedlich sind. In Richtung der einen - sogenannten ordentlichen - Achse polarisiertes Licht erfährt unabhängig von der Ausbreitungsrichtung im Medium immer den gleichen Brechungsindex $n_o(\omega)$. Der Brechungsindex von Licht mit Polarisation in Richtung der anderen - außerordentlichen - Achse hängt zusätzlich noch von der Ausbreitungsrichtung $\vec{z}/|z|$ im Medium ab: $n_a = n_a(\omega, \vec{z}/|z|)$.
In Abb. 3.9 ist das anschaulich dargestellt. Abhängig vom Winkel Θ, der die Ausbreitungsrichtung $\vec{z}/|z|$ repräsentiert, kann n_a angepasst werden, während n_o unverändert bleibt. Durch die Drehung eines doppelbrechenden Kristalls kann daher $n_o(\omega_1) = n_a(\omega_2)$ erreicht und damit SHG ermöglicht werden. Den verwendeten Aufbau als Fotografie zeigt Abb. 3.10. Da die Konversionseffizienz stark nichtlinear ist, kann an dieser Stelle kein einfacher mathematischer Ausdruck gegeben werden. Die Beobachtungen ergaben, dass mit etwa 8 W der Fundamentalen maximal $1,1$ W der zweiten Harmonischen erzeugt werden konnten.
Detailliertere Betrachtungen sind unter anderem in der Bachelorarbeit des Autors (Hen10) oder in (Rot00) zu finden.

3.2.4. Laserfokus in der Kammer

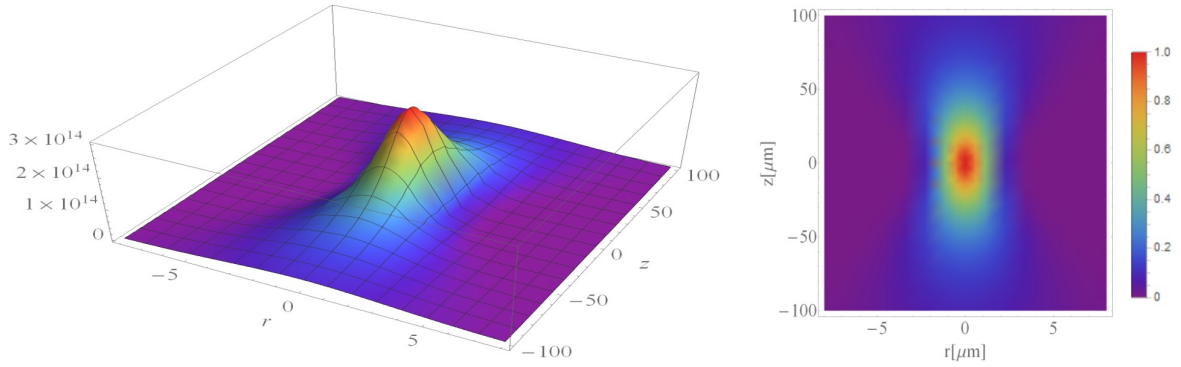


Abbildung 3.11.: Die Intensitätsverteilung im Laserfokus mit gegebenen experimentellen Parametern und Strahlqualitätsfaktor $M^2 = 1,3$. Links: 3D-Darstellung, die dritte Achse zeigt die Intensität in $[W/cm^2]$ an, r und z sind in $[\mu m]$ angegeben. Rechts: Dichtedarstellung in 2D. Der minimale Strahlradius wurde mit $w_0 = 2$ μm und die Rayleighlänge mit $\rho_0 = 30$ μm angenommen.

Die Laserpulse mit $\lambda = 400\ nm$ werden nach der SHG mit Spiegeln durch ein speziell beschichtetes Fenster, welches für die Transmission dieser Wellenlänge optimiert ist, in die Kammer gelenkt. Dort passieren sie zunächst kollimiert die Reaktionszone, bevor sie von einem sphärischen Silberspiegel mit einer Brennweite von $f = 60\ mm$ innerhalb der Kammer in den Gasstrahl zurück fokussiert werden. Wie in der Zeitdomäne in Glg. 2.3 stellt auch die Intensitätsverteilung in der Ortsdomäne eines unfokussierten ($w = konstant$) Strahls eine Gauß-Funktion dar (Ulr11)

$$I(r,z) = I_{peak} \cdot exp(\frac{-2r^2}{w^2}) \quad . \tag{3.6}$$

Dabei ist w der Strahlradius und r der Abstand zur Strahlachse.
Für einen fokussierten Strahl können wir für $w(z)$ Glg. 2.28 verwenden und erhalten für die Intensitätsverteilung in Abhängigkeit von der Strahlrichtung[3] z

$$I(r,z) = \frac{I_{peak}}{1 + (\frac{z}{\rho_0})^2} exp(\frac{-2r^2}{w_0^2(1 + (\frac{z}{\rho_0})^2)}) \quad . \tag{3.7}$$

I_{peak} kann mit

$$I_{peak,Theorie} = \frac{2 \cdot E_{Puls}}{\pi w_0^2 \tau} \tag{3.8}$$

bestimmt werden. Bei einer Leistung des 400 nm-Laserstrahls von $0,75\ W$ ergeben sich bei besagter Repetitionsrate von 100 kHz Pulsenergien von $E_{Puls} = 7,5\ \mu J$ und wir erhalten $I_{peak} = 2,3 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$. All diese Überlegungen setzen einen perfekt Gauß'schen Strahl voraus. Dieser ist in der Realität nie gegeben, weshalb der Strahlqualitätsfaktor M^2 berücksichtigt werden muss. M^2 gibt einen Vergleich des vorliegenden Divergenzwinkels α_{real} zum Divergenzwinkel $\alpha_{Gauß}$ des gleichen, perfekt Gauß'schen Strahls an: $M^2 = \alpha_{real}/\alpha_{Gauß}$. Die real gemessene Intensität ergibt sich daher aus

$$I_{peak,real} = \frac{I_{peak,Theorie}}{M^2} \quad . \tag{3.9}$$

In Abb. 3.11 sehen wir die Intensitätsverteilung im Laserfokus für $I_{peak} = 3 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$, $\rho_0 = 30\ \mu m$ und $w_0 = 2\ \mu m$ bei angenommenem Strahlqualitätsfaktor $M^2 = 1,3$. Wie schon an der Rayleighlänge und dem minimalen Strahlradius abzulesen, ist die Ausdehnung in Strahlrichtung um den Faktor 15 größer. Durch die starke Abhängigkeit der Ionisationsrate

[3] Eigentlich sollte hier x stehen, da die Laserpulse im definierten Laborkoordinatensystem in diese Richtung propagieren. Da in den Lehrbüchern aber jeweils z verwendet wird, wird dies hier ausnahmsweise auch getan.

von der Intensität kann man in guter Näherung davon ausgehen, dass es nur in der direkten Nähe des Fokus zu Ionisation kommt und Doppelionisation nur in dem in der Abbildung rot dargestellten Bereich stattfindet. Einfachionisation tritt auch bei niedrigeren Intensitäten auf, da die Einfachionisationsrate (PABT09) abhängig von der Intensität deutlich flacher verläuft als die Doppelionisationsrate (PMDT00).

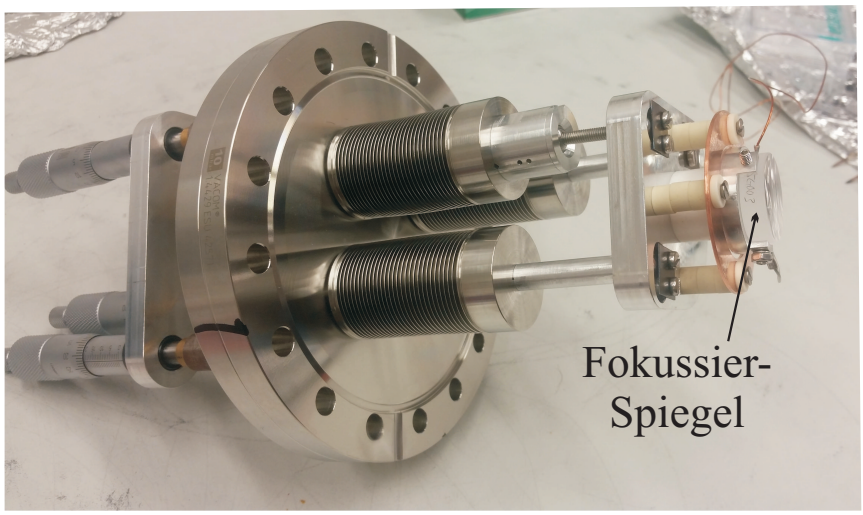


Abbildung 3.12.: Fotografie des Spiegelhalters, der nicht nur in allen drei Dimensionen verfahren, sondern auch in zwei Richtungen gekippt werden kann, um den Überlapp des Fokus mit dem Jet zu gewährleisten.

Um den äußerst kleinen Laserfokus mit dem nur wenige μm durchmessenden Jet in Überlapp zu bringen, muss der fokussierende Spiegel in der Kammer beweglich angebracht sein, denn der Jetverlauf ist durch die Geometrie der Kammer exakt vorgegeben und kann nicht verschoben werden. In den beschriebenen Experimenten wurde erstmals ein in der Arbeitsgruppe des Autors entwickelter Prototyp[4] zur Spiegelverschiebung verwendet (siehe Abb. 3.12). Dieser beinhaltet eine an drei Mikrometerschrauben außerhalb des Vakuums aufgehängte Platte, die mit der Spiegelhalterung im Vakuum verbunden ist und in x-Richtung bewegt werden kann, indem alle drei Schrauben gleichmäßig betätigt werden. Sie hält zwei weitere Mikrometerschrauben, die unabhängig von den drei ersten eine Kippung der Spiegelhalterung im Vakuum in zwei Richtungen herbeiführen können. Außerdem ist hinter dem Spiegel eine Kupferplatte angebracht, deren elektrisches Potential von außen beliebig einstellbar ist, um Feldeingriffe ins Spektrometer zu vermeiden oder am Spiegel entstehende Elektronen abzusaugen.

[4] In der Arbeitsgruppe des Autors ist dieser Prototyp als „Steibulator“ bekannt und wurde von Dr. Stefan Voss entwickelt.

3.3. COLTRIMS-Kammer

3.3.1. Überblick

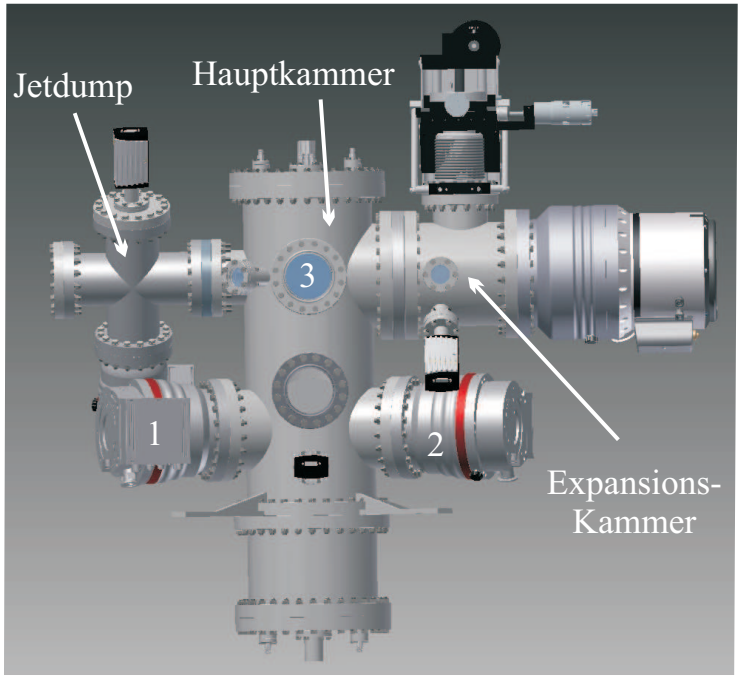


Abbildung 3.13.: Überblick über die gesamte COLTRIMS-Kammer. Der Gas-Jet wird in der Expansionskammer erzeugt, durchläuft die Hauptkammer und wird im „Jetdump“ abgepumpt. Die Hauptkammer wird dabei von einer Turbomolekularpumpe (2) und einer Getterpumpe (1) evakuiert. Die Laserpulse erreichen das Kammerinnere durch ein Fenster (3). (CAD-Zeichnung modifiziert aus (San15))

COLTRIMS ist eine Abkürzung und bedeutet **COL**d **T**arget **R**ecoil **I**on **M**omentum **S**pectroscopy. Das System präpariert mit Hilfe einer Überschallgasexpansion einen kalten Teilchenstrom (Jet), in dem alle Atome oder Moleküle fast identische Anfangszustände aufweisen. In Abb. 3.13 propagiert dieser Jet von rechts nach links: Nach der Erzeugung in der Expansionskammer durchläuft er die Hauptkammer (auch: Target-Kammer), in der die Ionisationsereignisse stattfinden, und wird anschließend im „Jetdump“ abgepumpt. Die Laserpulse, die zur Ionisation führen, treten durch ein speziell beschichtetes Fenster direkt in die Hauptkammer ein, werden im Inneren fokussiert und mit dem Jet in Überlapp gebracht.
All das findet in einem Ultrahochvakuum (UHV)[5] statt, damit die entstehenden Ionisationsfragmente nach der Wechselwirkung mit den Laserpulsen und vor dem Nachweis auf den

[5]Von UHV spricht man, wenn $p < 10^{-7}$ *mbar* erreicht ist.

Detektoren nicht mehr mit anderen Teilchen stoßen oder wechselwirken können. Außerdem wird für Laserexperimente ein besonders hohes Vakuum benötigt, da die Laserintensitäten in einer Größenordnung sind, in der im Fokus alle Restgasteilchen ionisiert werden und zu einem enormen Untergrund führen würden. Da einfach geladener molekularer Wasserstoff fast exakt das gleiche m/q aufweist wie He^{2+}-Ionen und damit im Flugzeitspektrum schwer unterscheidbaren Hintergrund erzeugt, muss besonders diese Spezies bei den Helium-Messungen effektiv entfernt werden.
Die Ionisationsfragmente werden in der Kammer mit einem durch ein Spektrometer erzeugten elektrischen und einem durch Helmholtz-Spulen erzeugten magnetischen Feld auf zwei gegenüberliegende Detektoren gelenkt[6] und dort nachgewiesen.

3.3.2. Vakuumsystem

Um ein UHV zu erreichen, sind mehrere Geräte und Arbeitsschritte notwendig. Herkömmliche Wälzkolben- oder Scrollpumpen erreichen nur etwa 10^{-3} *mbar* Enddruck und reichen für diesen Zweck nicht aus. Im Hochvakuumbereich nutzt man daher Turbomolekularpumpen, deren Kompressionsverhältnis[7] K deutlich höher ist und deren Enddrücke kleiner als 10^{-10} *mbar* sind. Diese können jedoch nicht gegen 1 *bar* Atmosphärendruck pumpen, weshalb Vorpumpen genutzt werden müssen, die einen niedrigeren Vordruck bereitstellen.
Rund um den Reaktionsbereich soll während der Messung zu jeder Zeit konstant niedriger Druck herrschen, weshalb die Kammer in mehrere, voneinander nur durch kleine Blenden getrennte Zonen geteilt ist. Dadurch werden Strömung und Diffusion von Teilchen aus der einen in die andere Zone unterdrückt und es können Bereiche unabhängiger Drücke geschaffen werden. In der sogenannten Hauptkammer befinden sich das Spektrometer, die Detektoren und die Ionisationszone. Damit der Druck während des Experiments durch den Gas-Jet nicht steigt, findet die Jet-Erzeugung in der Expansionskammer statt, die separat von einer Pfeiffer TPU 1501 mit hohem Saugvermögen[8] S gepumpt wird. Anschließend ist eine weitere Zone (2. Jetstufe) eingebaut, die den Jet senkrecht zur Ausbreitungsrichtung weiter kühlt und von einer Pfeiffer HiPace 80 evakuiert wird.
Allein die ionisierten Fragmente des Jets sollen in der Hauptkammer bleiben und nachgewiesen werden, die restliche Gasmenge würde nur das Restgas vermehren. Deshalb durchfliegen die Teilchen des Jets nach der Reaktionszone ein kleines Röhrchen und treten in den von einer Pfeiffer TMU 261 differentiell gepumpten Jetdump ein.
Für die Experimente dieser Arbeit muss in der Hauptkammer ein Druck von
$p < 5 \cdot 10^{-11}$ *mbar* erreicht werden, womit auch der H_2-Untergrund signifikant verringert wird. Frühere Versuche, mit zwei Leybold TW 700 dieses Vakuum zu erhalten, schlugen fehl. Mit deren technischen Möglichkeiten betrug der Enddruck minimal $p_{TW\ 700} = 2 \cdot 10^{-10}$ *mbar*. Mehrere Tests führten zu der Einsicht, dass diese Pumpen auch bei be-

[6] In Abb. 3.13 sind diese Detektoren in der Hauptkammer oben und unten angebracht.
[7] Das Kompressionsverhältnis gibt das Verhältnis der Drücke vor und nach der Pumpe an, ist abhängig von der Gasart und beträgt typischerweise $K_{H_2} = 10^5$ für Wasserstoff und $K_{Ar} = 10^{12}$ für Argon.
[8] Das Saugvermögen wird in Liter pro Sekunde angegeben und hängt von der Gasart ab. Bei der TPU 1501 beträgt es beispielsweise für Wasserstoff $S_{H_2} = 1150\ l/s$ und für Stickstoff $S_{N_2} = 1450\ l/s$.

sten Vorvakuumbedingungen und kleinstem Pumpvolumen kein besseres Vakuum erzeugen können. Daher wurden sie durch eine Pfeiffer TMU 521 sowie eine nicht-ionisierende Getterpumpe des Typs MK5 D-2000 der Firma SAES[9] ersetzt. Letztere absorbiert Teilchen durch chemische Reaktion, wenn diese das Getter-Material berühren. Um möglichst hohe Saugvermögen zu erreichen, werden daher große Oberflächen A benötigt. Dies wird sichergestellt, indem viele kleine tablettenartige Körper mit rauer Oberfläche verwendet werden. So erreicht die D-2000 $A = 1900\ cm^2$ und eine erstaunliche Saugleistung für Wasserstoff von $S_{H_2} = 2000\ l/s$.
Alle anderen erwähnten Pumpentypen gehören zu der Klasse der Turbomolekularpumpen[10] und benötigen ein ausreichendes Vorvakuum. Während der Messungen sind die Vorvakua für die Jet-Erzeugung (Expansionskammer und 2. Jetstufe) und den Rest (Targetkammer und Jetdump) voneinander getrennt. Da bei der Jet-Erzeugung eine große Gasmenge anfällt, muss dieser Teil mit einer Wälzkolbenpumpe vorgepumpt werden. Targetkammer und Jetdump werden hingegen von einem Pumpstand bestehend aus Membranpumpe und kleiner Turbomolekularpumpe vorgepumpt, der ein Vorkvakuum von kleiner als $10^{-5}\ mbar$ bereitstellt.

Abpumpvorgang und Ausheizen

Wir gehen von einer Apparatur gefüllt mit atmosphärischem Gas bei einem Druck von 1 bar aus und wollen in dieser das gewünschte Vakuum bereitstellen. Im Laufe dieser Arbeit hat sich eine bestimmte Routine bewährt, die verlässlich einen Druck von $2{\cdot}10^{-11}\ mbar$ erreicht. Diese soll nun im Sinne einer Bedienungsanleitung dargestellt werden:

Tag 1 Gesamte Apparatur mit Wälzkolbenpumpe auf $p < 1 \cdot 10^{-1}\ mbar$ evakuieren. Anschließend alle Turbomolekularpumpen hochfahren. Innerhalb von Minuten erreicht der Druck in der Hauptkammer $p = 10^{-6}\ mbar$.

Tag 2 Nach etwa 24 Stunden ist der Druck in der Hauptkammer durch die Pumpen auf $3 \cdot 10^{-8}\ mbar$ bis $5 \cdot 10^{-8}\ mbar$ gesunken. Kammer zunächst auf etwa 80 $°C$ heizen. Das Eintritts-Fenster für den Laser verträgt nur Temperaturänderungen von $dT/dt = 3\ °C/min$. Sobald diese Temperatur erreicht ist, auf 120 $°C$ erhöhen.

Tag 3 Temperatur auf $130 - 140\ °C$ erhöhen und sicherstellen, dass diese überall in der Kammer herrscht.

Tag 4-8 Warten und überwachen. Der Druck nähert sich exponentiell einem Grenzwert.

Tag 9 Der Druck in der Hauptkammer beträgt jetzt etwa $3 \cdot 10^{-8}\ mbar$. Getterpumpe auf 450 $°C$ erwärmen. Dann für etwa 45 Minuten bei dieser Temperatur belassen. Dabei steigt der Druck auf über $10^{-6}\ mbar$. Getterpumpe abkühlen lassen.

[9] Informationen dazu finden sich auf www.saesgetters.com.
[10] Details zu deren Funktionsweisen enthält (Vac08).

Tag 10 Nach etwa 24 Stunden beträgt der Druck in der Hauptkammer $5 \cdot 10^{-9}$ *mbar*, die Getterpumpe ist noch rund 150 °*C* warm. Alle Geräte in Hauptkammer und Jetdump entgasen. Dazu gehören etwa TSP, Vakuummessgeräte und Massenspektrometer. Heizung auf etwa 100 °*C* einstellen. Erneute Aktivierung der Getterpumpe durch Heizung auf 450 °*C* und 45 Minuten warten. Wieder abkühlen lassen.

Tag 11-13 Schon nach einem Tag werden $2 \cdot 10^{-9}$ *mbar* erreicht. Warten und überwachen.

Tag 14 Ausschalten der Heizung, Abkühlen.

Tag 15 Vakuum erreicht $p < 2 \cdot 10^{-11}$ *mbar*.

Entscheidend für die Bereitstellung von UHV ist das Heizen der Apparatur. Während diese Atmosphärendruck ausgesetzt war, hat ihre Oberfläche Gasatome und -moleküle adsorbiert und absorbiert. Unter Vakuum lösen sich diese Teilchen nach und nach von den Wänden und verunreinigen die Apparatur. Außerdem arbeitet die Turbomolekularpumpe nach einem statistischen Prinzip: Wenn Teilchen die Oberfläche ihrer Vorderseite berühren, werden diese durch einen Rotor/Stator-Aufbau auf die Rückseite der Pumpe befördert. Je länger also die Verweildauer der Teilchen auf den Oberflächen der restlichen Apparatur ist, desto seltener treffen sie auf die Rotoren und desto langsamer erfolgt das Pumpen. Diese Prozesse (Ausgasen aus und Verweilen auf den Wänden) erhöhen den Druck in der Vakuum-Kammer und halten bei Raumtemperatur Monate lang an, bis sie abklingen. Durch Erhöhung der Temperatur werden sie enorm beschleunigt und die Wartezeit, bis der Großteil der störenden Teilchen beseitigt ist, reduziert sich auf wenige Tage.

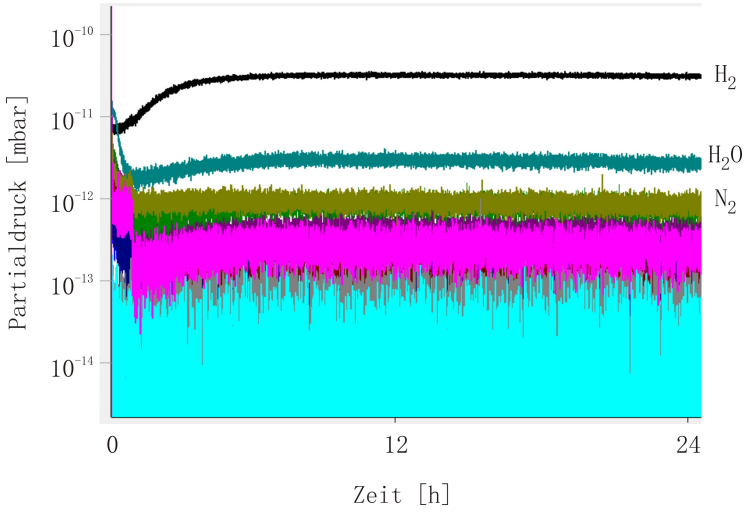


Abbildung 3.14.: Nach dem Ausheizen aufgenommenes Massenspektrum.

Abb. 3.14 zeigt ein beispielhaftes Massenspektrum nach dem Ausheizvorgang. Der exponentielle Anstieg der Partialdrücke zu Beginn der Messzeit ist auf das Einschalten des

Massenspektrometers zurückzuführen. Wasserstoff stellt mit Abstand den größten Teil des Restgases, es folgen Wasser und Stickstoff.

3.3.3. Präparation des Targets - der Jet

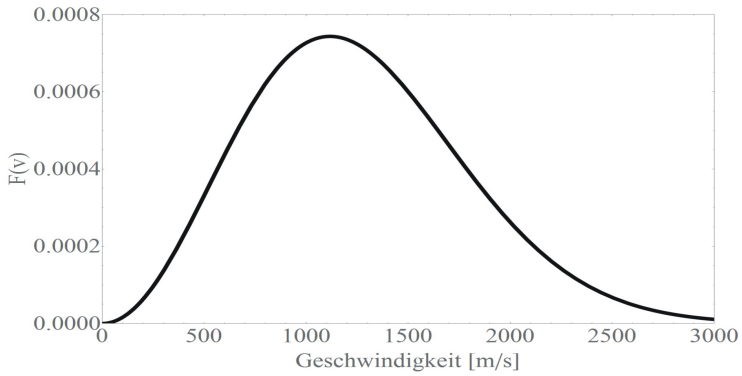


Abbildung 3.15.: Maxwell-Geschwindigkeitsverteilung am Beispiel von Helium bei Raumtemperatur (300 K).

Besonders kritisch ist die Bereitstellung eines Targets mit klar definierten Anfangsbedingungen. Da der durch Ionisation hervorgerufene Impulsübertrag auf die Teilchen in der Größenordnung von 1 $a.u.$ liegt, erhalten Ionen nur Energien von wenigen meV. Die Maxwell-Geschwindigkeits-Formel

$$F(v) = 4\pi(\frac{m}{2\pi k_b T})^{\frac{3}{2}} v^2 exp(-\frac{mv^2}{2k_b T}) \tag{3.10}$$

ergibt für das Beispiel Helium bei Raumtemperatur eine in Abb. 3.15 gezeigte Verteilung. k_b ist hierbei die Boltzmannkonstante. Das Maximum bei etwa 1100 m/s entspricht einer Energie von rund 25 meV. Außerdem ist leicht zu erkennen, dass auch die Breite der Verteilung etwa in dieser Größenordnung liegt. Das Auflösen von wenigen meV an warmem Gas ist daher unmöglich.

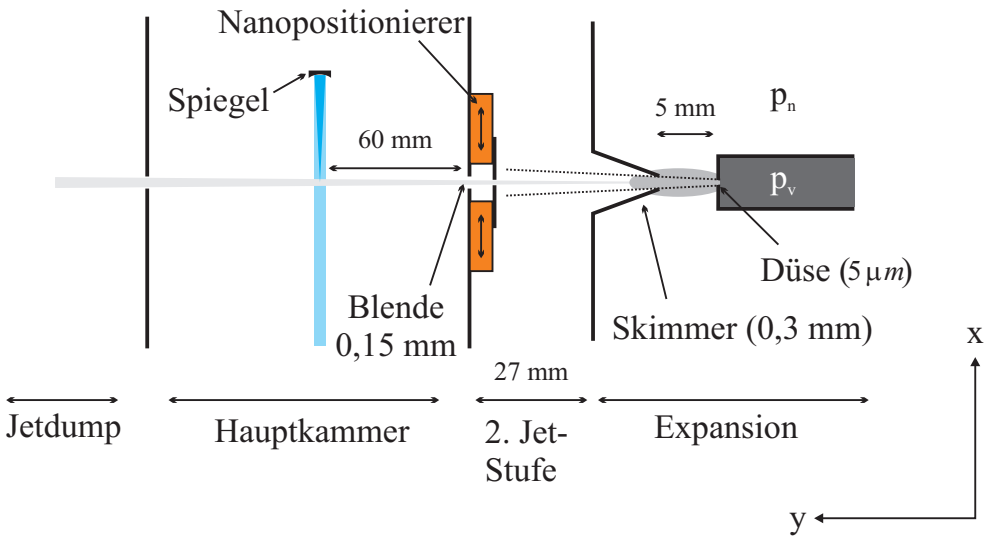


Abbildung 3.16.: Skizze des gesamten experimentellen Jet-Systems. Nach der Entstehung in der Expansionskammer erreicht der Jet durch eine Blende in der Hauptkammer den Überlapp mit dem Laserfokus und wird im Jetdump vernichtet.

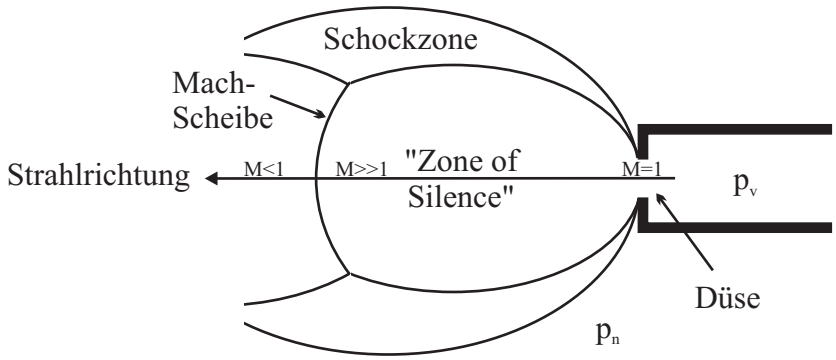


Abbildung 3.17.: Schema der Jet-Entstehung an der Düse. In der „Zone of Silence“ treten keine Stöße auf und die Teilchen bewegen sich mit Überschallgeschwindigkeit $M \gg 1$ (angelehnt an (Pau00)).

Abhilfe schafft die sogenannte Überschall-Gasexpansion (ÜGE), die dazu führt, dass Atome oder Moleküle im entstehenden Strahl eine extrem schmale Geschwindigkeitsvertei-

lung aufweisen. Die folgenden Betrachtungen lehnen sich an (Sch06), (San15) und (Mil88) an.
ÜGE tritt auf, wenn Gas aus einem Bereich hohen Drucks p_v durch eine kleine Öffnung (Düse, im vorliegenden Fall mit dem Durchmesser $d_D = 5\mu m$) in einen Bereich niedrigen Drucks p_n expandiert (gesamter Aufbau des Jet-Systems siehe Abb. 3.16). Bei diesem Vorgang wird die gesamte Enthalpie des Gases, die sich aus innerer Energie und gespeicherter Volumenarbeit zusammensetzt, in gerichtete Bewegung umgewandelt[11]. Für die Geschwindigkeit in Richtung des Strahls $v_\parallel$ ergibt sich daher

$$N\frac{f}{2}k_bT_v + p_vV_v = \frac{Nm}{2}v_\parallel^2 \quad , \tag{3.11}$$

mit der Anzahl der Teilchen N, Anzahl der Freiheitsgrade f, Temperatur des Gases vor der ÜGE T_v, dem Volumen V_v, welches die N Teilchen beim Druck p_v einnehmen und der Masse der Teilchen m. Mit der idealen Gasgleichung $pV = Nk_bT$ erhalten wir

$$\frac{f+2}{2}k_bT_v = \frac{1}{2}mv_\parallel^2 \tag{3.12}$$

und damit einen Ausdruck für die **Jet-Geschwindigkeit** $v_\parallel$ (für Atome ist die Anzahl der Freiheitsgrade $f = 3$)

$$v_\parallel = \sqrt{\frac{(f+2)k_bT_v}{m}} \quad . \tag{3.13}$$

Daher folgt für die in dieser Arbeit verwendeten Jets aus Helium bei $T_v = 30\ K$ $v_{Jet,He} = 558\ m/s$ und aus Neon bei $T_v = 125\ K$ $v_{Jet,Ne} = 510\ m/s$.
Diese einfachen (Energie-)Betrachtungen machen keinesfalls deutlich, welche komplexen Vorgänge bei der Expansion ablaufen. In Abb. 3.17 sind schematisch die dynamischen Verhältnisse gezeichnet. In der Zone of Silence kommt es nicht zu Stößen und die Geschwindigkeiten der Teilchen übersteigen die Schallgeschwindigkeit ($M = v/c_{Schall} \gg 1$). Umschlossen wird dieser Bereich von einer Schockzone, in der große Druck- und Geschwindigkeitsgradienten herrschen. Die Länge l_z der Zone of Silence kann mit

$$l_z = \frac{2}{3}d_D\sqrt{\frac{p_v}{p_n}} \tag{3.14}$$

berechnet werden. Mit $p_v \approx 6,2\ bar$ und $p_n \approx 1,8 \cdot 10^{-3}\ mbar$ ergibt sich beispielsweise für die Helium-Messungen $l_z = 7\ mm$.
Die Jet-Geschwindigkeit $v_\parallel$ in Glg. 3.13 gibt nur den Mittelwert der Geschwindigkeitsverteilung der Teilchen in Ausbreitungsrichtung an. Eine Aussage über die Breite $\Delta v_\parallel$ dieser Verteilung macht das sogenannte „Speedratio“ (S)

[11] $p_n \approx 0$ muss gegeben, p_v/p_n ausreichend groß sein und der Prozess näherungsweise adiabatisch ablaufen.

$$S_{\parallel} = \frac{v_{\parallel}}{\Delta v_{\parallel}} \quad . \tag{3.15}$$

Laut (Mil88) können wir $S_{\parallel}$ aus experimentellen Parametern bestimmen:

$$S_{\parallel} = A[\sqrt{2} n_v d_D (\frac{53 C_6}{k_b T_v})^{1/3}]^B \quad . \tag{3.16}$$

A und B sind Konstanten, die vom sogenannten Adiabatenkoeffizienten $\kappa = (f+2)/f$ abhängen. Für Atome ($\kappa = 5/3$) sind die experimentell bestimmten Parameter $A = 0,778$ und $B = 0,495$. C_6 ist eine von der Gasart abhängige Konstante und beträgt für Helium $C_{6,He} = k_b \cdot 0,154 \cdot 10^{-43}\ K \cdot cm^6$ und für Neon $C_{6,Ne} = k_b \cdot 0,758 \cdot 10^{-43}\ K \cdot cm^6$. n_v gibt die Teilchendichte in der Düse an und kann mit

$$n_v[\frac{1}{cm^3}] = 7,2 \cdot 10^{23} \cdot \frac{p_v[bar]}{T[K]} \tag{3.17}$$

berechnet werden. Für die Helium-Messungen ist damit $n_{v,He} = 1,9 \cdot 10^{23}\ cm^{-3}$, für die Neon-Messungen $n_{v,Ne} = 4,6 \cdot 10^{22}\ cm^{-3}$. Für die berechneten Speedratios ergibt sich $S_{\parallel,He} \approx 464$ sowie $S_{\parallel,Ne} \approx 157$. S ist sowohl von der Temperatur T_v als auch vom Druck p_v abhängig. Gerade bei der Helium-Messung wurde eine sehr gute Impulsauflösung in allen drei Raumrichtungen benötigt, um aus einem gemessenen He^{2+}-Ion und einem Elektron den Impulsvektor des zweiten Elektrons mit hoher Genauigkeit berechnen zu können. Deshalb wurde der Helium-Jet auf 30 K gekühlt und ein hoher Druck von $6,2\ bar$ angelegt. Bei noch höheren Drücken liefe man Gefahr, signifikant viele Heliummoleküle durch die Bildung von Van-der-Waals-Bindungen zu erzeugen. Die Kühlung wurde mit Hilfe eines Durchflusskryostaten realisiert, der flüssiges Helium um die Düse fließen lässt. Je nach eingestelltem Fluss kann damit T_v auf unter 10 K gebracht und mit automatischer Gegenheizung auf unter $\Delta T_v = 0,01\ K$ genau stabil gehalten werden.
In Abb. 3.18 sind gemessene Speedratios aus (BV89) für Helium zu sehen, unter anderem auch für $T_v = 30\ K$. Für $p_v = 6,2\ bar$ und $d_D = 5\ \mu m$ ergibt sich $p_v \cdot d_D \approx 3\ Torr \cdot cm$. Das experimentell ermittelte $S_{\parallel,gemessen} \approx 200$ (roter Pfeil) ist also deutlich kleiner als das berechnete, was damit zusammenhängen kann, dass es entweder zur Streuung der Jet-Atome am Restgas in der Expansionskammer kam oder aber der reale Düsendurchmesser etwas kleiner war als der angenommene. Die folgende Abschätzung der Impulsungenauigkeit in Jet-Richtung ist also mindestens mit einem Fehler von einem Faktor 2 behaftet.

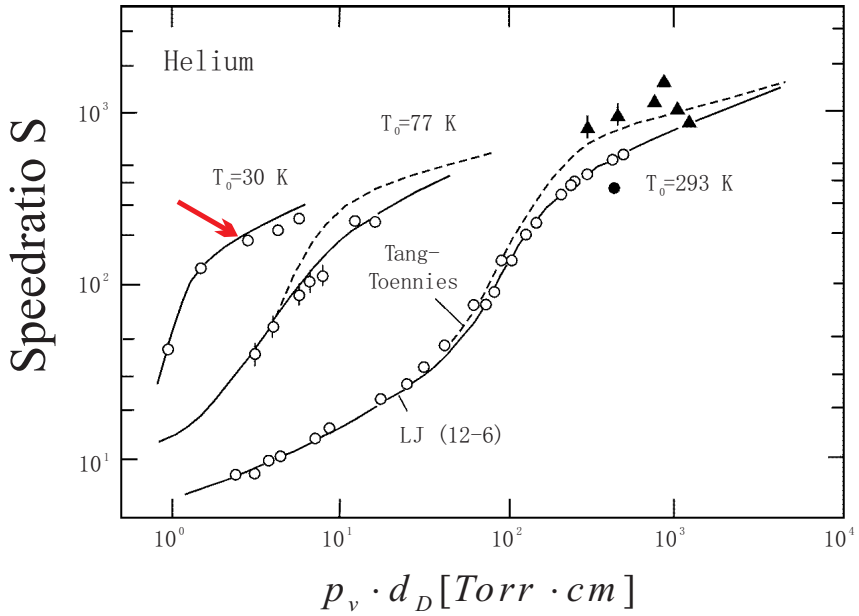


Abbildung 3.18.: Gemessene Speedratios für Helium bei verschiedenen Düsen-Temperaturen abhängig vom Produkt $p_v \cdot d_D$ (entnommen aus (Sch06)). Der rote Pfeil markiert die Bedingungen bei den Helium-Messungen.

Mit Glg. 3.15 lässt sich eine Breite der Geschwindigkeitsverteilung angeben: $\Delta v_{\parallel} = \frac{v_{\parallel}}{S_{\parallel}}$. Diese beträgt mit konservativ angenommenem $S_{\parallel} = 200$ für die Helium-Messungen $\Delta v_{\parallel,He} = 2,79\ m/s = 1,3 \cdot 10^{-6}\ a.u.$ und für $S_{\parallel} = 80$ bei Neon $\Delta v_{\parallel,Ne} = 5,1\ m/s = 2,3 \cdot 10^{-6}\ a.u.$. Die entsprechenden durch den Jet bedingten Impulsungenauigkeiten[12] in $a.u.$ betragen also

$$FWHM(p_{\parallel,He}) = 0.016\ a.u. \tag{3.18}$$

sowie

$$FWHM(p_{\parallel,Ne}) = 0.14\ a.u.\ \ . \tag{3.19}$$

Für die Richtungen senkrecht zur Ausbreitungsrichtung berechnet sich die Impulsungenauigkeit nach einfachen geometrischen Überlegungen (Web03) mit

$$\Delta p_{\perp} = m v_{\parallel} \cdot \frac{d_D + d_S}{l}\ \ , \tag{3.20}$$

[12] $\Delta p_{\parallel} = m \cdot \Delta v_{\parallel}$ wurde noch mit einem Faktor $2\sqrt{ln(2)}$ multipliziert, um konsistent mit (Web03) und anderen Abschlussarbeiten der Arbeitsgruppe des Autors zu sein.

wobei d_S die Breite des die Geometrie bestimmenden Objekts in dieser Richtung und l der Abstand dieser Geometrie von der Düse sind. Die Richtungen senkrecht zum Strahl werden somit durch einfaches „Wegschneiden“ von schnellen bzw. warmen Komponenten im Strahl gekühlt. Im folgenden Abschnitt wird darauf genauer eingegangen.

Kollimatoren

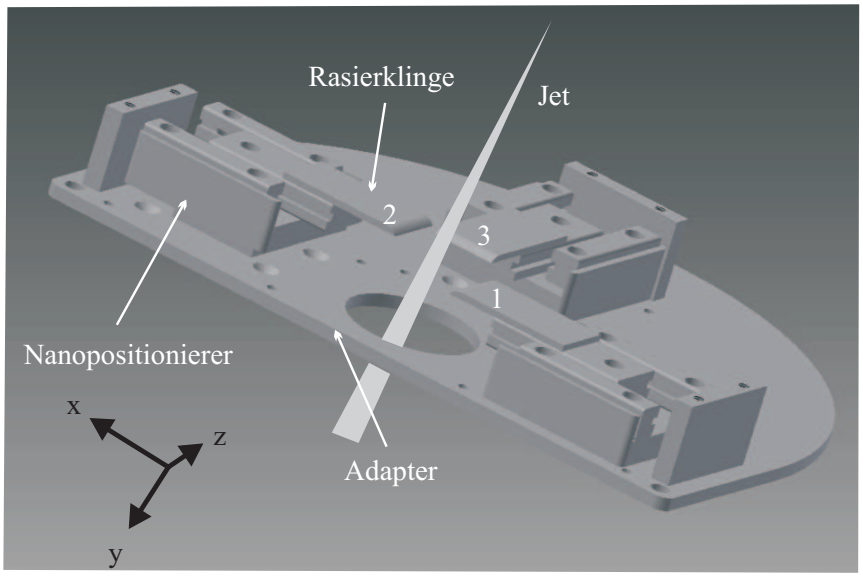


Abbildung 3.19.: CAD-Zeichnung der Nanopositionierer mitsamt Adapter und Rasierklingen. Der Adapter ist maßgeschneidert auf die Innenseite der zweiten Jetstufe und hält drei Positionierer, auf welchen Rasierklingen aufgeklebt sind. Diese können mit einer Präzision von wenigen Nanometern den Jet beschneiden. Die Rasierklingen sind nummeriert wie in Abb. 3.20.

Ein Hauptgrund für den Erfolg der Messungen ist die prinzipiell nanometergenaue Kontrolle über die Ausdehnung des Jets in Laserausbreitungsrichtung. Diese war nötig, da das Experiment gewisse unausweichliche Vorgaben macht:

Vorgabe 1 Das Gas in der Düse muss auf $T_v = 30\ K$ gekühlt werden, um eine gute Impulsauflösung in y-Richtung zu erhalten.

Vorgabe 2 Für die Intensität muss $I_{peak} > 10^{14}\ W/cm^2$ gelten, um Doppelionisation zu induzieren.

Vorgabe 3 In guter Näherung tritt Doppelionisation fast ausschließlich bei der maximal vorliegenden Intensität auf (in etwa im rot dargestellten Bereich von Abb. 3.20), Einfachionisation dagegen kann auch bei niedrigeren Intensitäten stattfinden. Der Jet

muss im Doppelionisationsbereich ausreichend dicht sein, um zumindest $\approx 1 He^{2+}$-Ion pro Sekunde zu erhalten. Andernfalls würde die Messzeit Monate betragen.

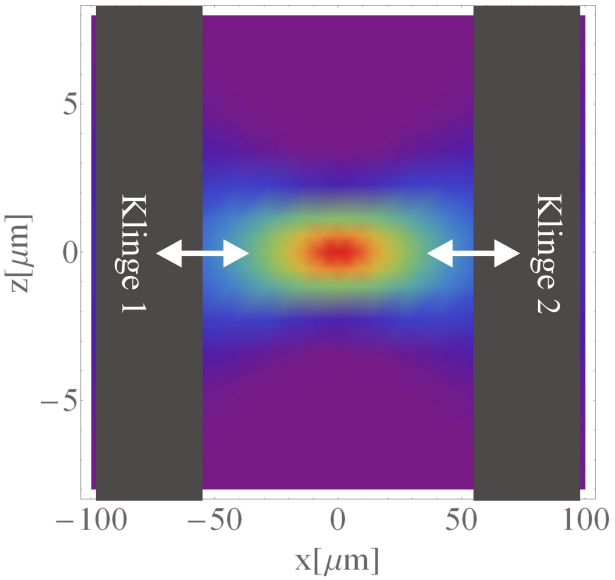


Abbildung 3.20.: Schema der Jet-Verkleinerung in Laserausbreitungsrichtung. Mit Hilfe von auf den Nanopositionierern befestigten Rasierklingen werden effektiv Teile aus dem Gasstrahl entfernt, die fast ausschließlich zur Einfachionisation beitragen. Das Bild zeigt die Sicht von der Düse auf den Laserfokus, also das Fenster, durch welches die Atome im Jet in die Hauptkammer gelangen können.

Vorgaben 1+3 verlangen einen extrem dichten Jet, Vorgabe 2 führt zu einer hohen Einfachionisationsrate. Ohne die Verkleinerung des Jets erreicht und überschreitet der Mittelwert von Ionisationsereignissen pro Laserpuls $< N_{ion}/Puls > \quad > 1$. Dadurch ist es nicht mehr möglich, Elektronen aus Doppelionisation von solchen aus Einfachionisation im gleichen Laserpuls zu unterscheiden. Dieses Problem wird umgangen, indem die Klingen auf den Nanopositionierern die Bereiche des Jets auslöschen, die im Laserfokus ausschließlich zu Einfachionisation führen würden.
Abb. 3.19 zeigt die Realisierung dieser Kontrolle mit Hilfe von Nanopositionierern der Firma SmarAct[13], die aufgeklebte Rasierklingen bewegen. Klingen 1 und 2 werden im Experiment verwendet, um möglichst symmetrisch um den Fokus in x-Richtung den Jet zu verkleinern und damit zu kühlen. Klinge 3 wurde ausschließlich verwendet, um den Jet schnell an- bzw. ausschalten zu können. Die Einbringung einer vierten Klinge gegenüber von Klinge 3 war aufgrund der Form der 2. Jetstufe nicht möglich. Wie Abb. 3.20 zeigt, ist dies auch nicht nötig, da die Intensitätsverteilung in dieser Richtung extrem schmal ist.

[13]Informationen auf http://www.smaract.de .

In z-Richtung (Flugzeitrichtung) des Laborkoordinatensystems ist die begrenzende Geometrie also die Blende aus Abb. 3.16 mit $d_{Blende} = 150\ \mu m$, die $l = 32\ mm$ von der Düse entfernt ist. Damit ergeben sich Impulsungenauigkeiten in dieser Richtung von

$$\Delta p_{z,He} = 0,009\ a.u. \tag{3.21}$$

und

$$\Delta p_{z,Ne} = 0,04\ a.u.\ \ . \tag{3.22}$$

Die verwendeten Nanopositionierer verfügen über keinen Rückmeldemechanismus über den real zurückgelegten Fahrweg, weshalb es nicht möglich ist, eine genaue Aussage über die aktuelle Position zu machen. Im Experiment wurde daher folgendermaßen vorgegangen, um symmetrisch um den Fokus zu schneiden:

1. Zunächst wird bei ausgeschaltetem Elektronendetektor eine niedrige Intensität eingestellt, die keine Sättigung bzw. Zerstörung der MCPs des Ionendetektors bewirkt. Die Ionenrate sollte dabei $\Gamma_{Ionen} < 10\ kHz$ sein. Nehmen wir beispielsweise $\Gamma_{Ionen} = 8\ kHz$ an.

2. Klinge 1 wird so verfahren, dass die Ionenrate um einen bestimmten Wert abnimmt, in unserem Beispiel um $\Delta\Gamma_{Ionen} = 3\ kHz$. Hinweis: Eine Änderung der Rate tritt erst auf, wenn die Klinge die Querschnittsfläche der Blende erreicht, die nachfolgend angebracht ist.

3. Klinge 2 wird so verfahren, dass die Ionenrate um den gleichen Wert wie in Schritt 2 abnimmt. Danach beträgt $\Gamma_{Ionen} = 2\ kHz$.

4. Intensität wird erhöht, sodass wieder die Rate aus Schritt 1 vorliegt. Schritte 1-4 müssen wiederholt werden, bis die gewünschte Intensität erreicht ist. Danach kann der Elektronendetektor angeschaltet werden.

Am Ende sollte zwischen den Klingen ein Abstand von weniger als 10 μm vorliegen. Dadurch ergeben sich Impulsungenauigkeiten in x-Richtung, die kleiner sind als

$$\Delta p_{x,He} = 0,0009\ a.u. \tag{3.23}$$

sowie

$$\Delta p_{x,Ne} = 0,004\ a.u.\ \ . \tag{3.24}$$

3.3.4. Messprinzip

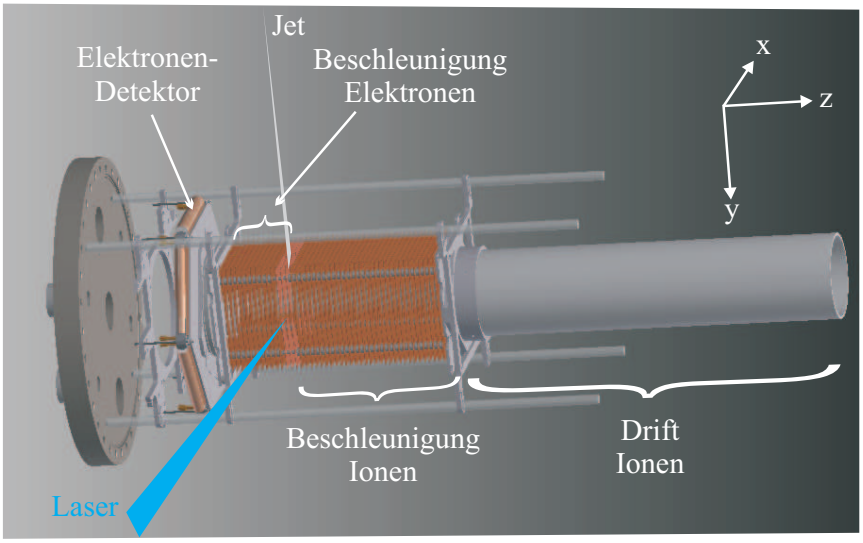


Abbildung 3.21.: Aufbau des verwendeten Spektrometers mit Elektronendetektor (der Ionendetektor ist nicht gezeigt und wäre in der Verlängerung der Driftstrecke in positiver z-Richtung montiert). Nach der Ionisation innerhalb des Spektrometers werden die Elektronen (Ionen) durch ein elektrisches Feld in negative (positive) z-Richtung beschleunigt und anschließend auf den Detektoren nachgewiesen.

Bereits in vielen Arbeiten wurde das COLTRIMS-Messprinzip detailliert beschrieben. Besonders ausführliche Darstellungen finden sich in (Sch06), (Web03) und (UMD$^+$03). An dieser Stelle soll ein zusammenfassender Überblick genügen, um die folgenden Experimente und Ergebnisse begreifen zu können.
Der Überlapp von Laserpulsen und Jet wird innerhalb eines Spektrometers positioniert (Abb. 3.21), das die Aufgabe erfüllt, mit Hilfe eines elektrischen Feldes die Reaktionsprodukte auf zwei gegenüberliegende Detektoren zu lenken. Zusätzlich wird parallel zum E-Feld ein magnetisches Feld angelegt, welches durch ein Helmholtz-Spulenpaar außerhalb des Vakuums erzeugt wird. Dieses B-Feld ist nötig, um Elektronen, deren Impulskomponente senkrecht zur z-Richtung groß ist, durch das Aufzwingen einer Gyrationsbewegung verlässlich auf die Detektoren lenken zu können, da sie sonst gegen die Spektrometerplatten stoßen und nicht den Detektor treffen würden. Nach einer gewissen Flugzeit, die im gewählten Spektrometer für Ionen mehrere 10 μs und für Elektronen nur weniger als 200 ns beträgt, erreichen die geladenen Teilchen das Ende des Spektrometers, welches durch ein engmaschiges Gitter (Ionenseite: 160 μm, Elektronenseite: 250 μm) begrenzt ist. Dieses Gitter sorgt für eine Abgrenzung verschiedener Feldbereiche: Im Spektrometer selbst

herrscht zum Zwecke einer guten Impulsauflösung[14] ein sehr niedriges elektrisches Feld, zwischen Gitter und folgendem Detektor ein hohes Nachbeschleunigungs-Feld, um ausreichende Energien der Teilchen zu erreichen. Hohe Energien sind nötig, um anschließend in zwei hintereinander angebrachten Multi-Channel-Plates (MCPs) mit $d_{MCP} = 80\ mm$ eine Lawine von etwa 10^6 Elektronen auszulösen (siehe Abb. 3.22). Dafür muss zwischen Vorderseite (MCP Front) und Rückseite (MCP Back) eine Spannung angelegt werden, die die Elektronenwolke durch den Kanal beschleunigt. Die Ladungsvervielfachung in den MCPs ist unumgänglich, da einzelne geladene Teilchen mit den verwendeten Detektoren nicht nachgewiesen werden können.

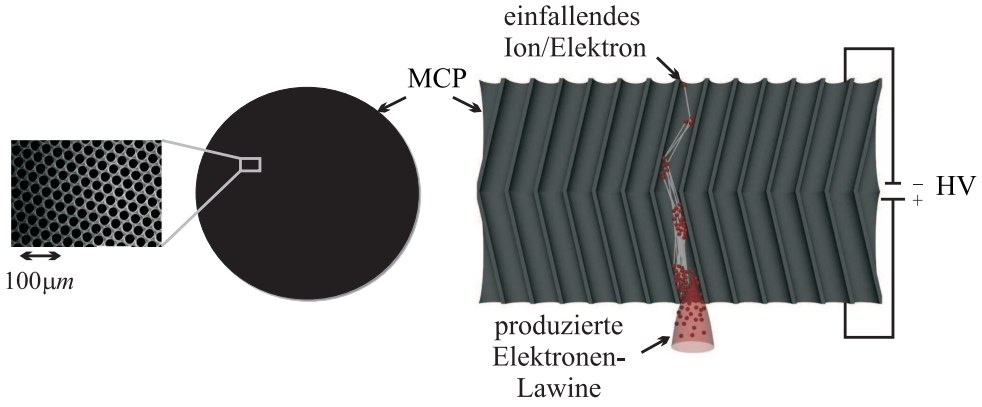


Abbildung 3.22.: Schema und Funktionsweise der MCPs. Ein einfallendes Teilchen stößt gegen die Wand der etwa 25 μm durchmessenden Kanäle und löst dadurch Elektronen aus, die wiederum selbst durch das Anlegen einer Hochspannung beschleunigt werden und nach mehrfachem Stoßen eine Elektronenlawine am Ausgang des Kanals verursachen (übernommen aus (Ulr11)).

Die entstehende Ladungswolke ist groß genug, um in der anschließenden Delay-Line-Anode (DLA) einen Spannungspuls zu induzieren (Abb. 3.23). Aufgebaut ist die DLA aus mehreren Ebenen, wobei jede aus jeweils zwei parallel um eine Trägerplatte gewickelten Kupferdrähten besteht, deren insgesamt vier Enden separat ausgelesen werden können. An die Drähte wird ein relativ zur Rückseite des MCPs positives Potential angelegt, um die Elektronenwolke in ihre Richtung zu beschleunigen. Die durch die Wolke induzierten Spannungspulse laufen zu jeweils allen Enden der Drähte. Anhand der Detektionszeitpunkte an den gegenüberliegenden Enden kann ein genauer Rückschluss auf den Ort der Elektronenwolke in Richtung der Ortsauflösung - also in einer Dimension - erfolgen. Um einen zweidimensionalen Ort zu bestimmen, sind also mindestens zwei dieser Drahtpaare

[14] Bei gegebener Orts- und Flugzeitauflösung der Detektoren können bessere Impulsauflösungen nur durch Streckung der Orts- und Flugzeitverteilung erreicht werden. Das wird durch lange Flugzeiten (=kleine Felder) im Spektrometer realisiert, wodurch sich feste Startimpulsdifferenzen zu höheren Orts- und Flugzeitdifferenzen aufweiten.

notwendig, die um 90° zueinander verdreht angebracht sind. Dieser Aufbau wird „quadratische Anode“ (Quad-Anode) genannt. Eine weitere Ebene von Drahtpaaren, die nun jeweils um einen Winkel von 60° zueinander gedreht sind, erhöht die Ortsauflösung, vermindert die Totzeit des Detektors und führt zu verlässlicherem Nachweis der Teilchen. Man spricht hier von einer hexagonalen Anode (Hex-Anode), die in den vorliegenden Experimenten auch ausschließlich benutzt wurde (JCC+02).

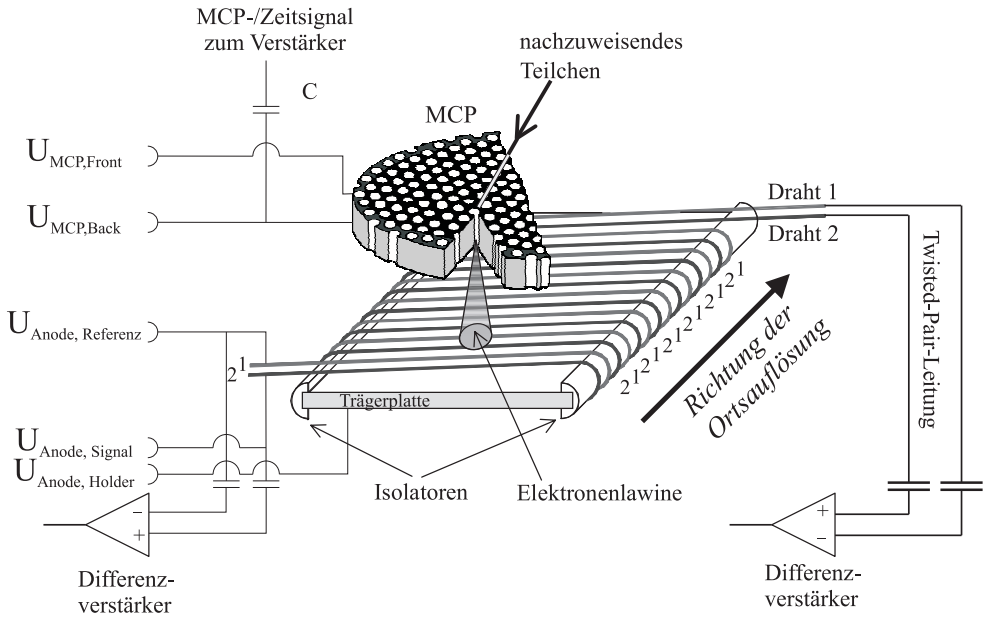


Abbildung 3.23.: Aufbau und Funktionsweise einer Delay-Line-Anode. Die aus dem MCP emittierte Elektronenlawine löst auf zwei parallel gewickelten Drähten Spannungspulse aus, die in beide Richtungen über den Draht laufen und nach Auskopplung über Kondensatoren mit Differenzverstärkern verstärkt werden (übernommen aus (Sch00)).

Durch die Verwendung eines Differenzverstärkers für jedes Ende der Drahtpaare können die Signale auf etwa $0,5$ bis $1,5\ V$ verstärkt werden. Im Computer sollen diese jedoch nicht in ihrer ursprünglichen Form gespeichert werden, sondern nur die Zeitpunkte für die Ankunft jedes Signals. Dazu erzeugt man mit einem **CFD** (**C**onstant **F**raction **D**iscriminator) Standard-NIM-Signale[15], die mit einer **TDC**-Karte (**T**ime to **D**igital **C**onverter) an den Computer übergeben werden können. Der CFD kopiert dabei das eintreffende Signal, multipliziert es mit einem konstanten Faktor und fügt es invertiert mit einem Zeitversatz zum Ausgangssignal hinzu. Dadurch entsteht zwischen den beiden Signalen ein Nulldurchgang, der weitgehend unabhängig von der Höhe des Signals ist. An diesem Zeitpunkt wird das NIM-Signal erzeugt.

[15]**NIM** steht für **N**uclear **I**nstrument **M**odule; NIM-Signale sind bipolare Signale (0 oder 1).

In einigen Fällen ist es sinnvoll, statt einer Zeit die tatsächliche Pulsform zu speichern. Dadurch lässt sich in der Analyse auch im Nachhinein unter anderem die Höhe des Signals rekonstruieren. Das ist vor allem notwendig, um mit Hilfe einer Photodiode die Energie jedes Pulses zu bestimmen, denn damit erhält man auch einen Hinweis auf seine Intensität. Zu diesem Zweck wird das Photodioden-Signal direkt mit einer **ADC**-Karte (**A**nalog to **D**igital **C**onverter; $1,25\ Gs$, also $t_{Sample} = 0,8\ ns$ Abtastzeit) mitsamt der Pulsform und -höhe im Computer gespeichert, ohne vorher einen CFD zu durchlaufen.

Neuerungen

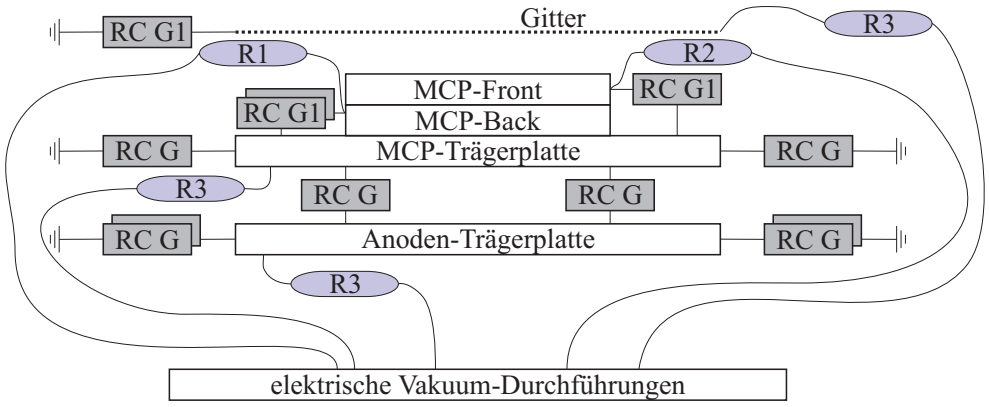


Abbildung 3.24.: Signalformverbesserung durch Einbringung von RC-Gliedern und Abschlusswiderständen. Grau dargestellt sind die RC-Glieder, die jeweils mit einem Kondensator von $C = 4,7\ nF$ und einem Widerstand von (RC G) $R = 15\ \Omega$ bzw. (RC G1) $R = 100\ \Omega$ ausgestattet sind. Widerstände sind in der Farbe Flieder gekennzeichnet mit $R1 = 200\ \Omega$, $R2 = 100\ \Omega$ und $R3 = 1000\ \Omega$. Hintereinander dargestellte RC-Glieder repräsentieren zwei Stück dieser Sorte.

Um die Signalform zu verbessern und hochfrequente Störsignale durch bspw. Übersprechen zwischen Teilen verschiedenen Potentials zu vermeiden, wurden eine Vielzahl von RC-Gliedern[16] in den Aufbau eingebracht und die Verbindungskabel zwischen elektrischer Durchführung am Vakuumflansch und Bauteil mit Widerständen[17] versehen (Abb. 3.24). Sowohl RC-Glieder als auch Widerstände müssen dabei so nah wie möglich am zugehörigen Bauteil befestigt werden.
Tatsächlich konnten mit dieser Veränderung MCP-Front-Pulse mit deutlich weniger als

[16] RC-Glied: Widerstand (R), der mit einem Kondensator (C) in Reihe geschaltet ist. Der Kondensator dient hierbei als sogenannter „Hochpass“, der nur hochfrequente Wechselspannung weitergibt.
[17] Mögliche Reflexionen durch Fehlanpassung der Impedanz sollen direkt am Bauteil auftreten und durch eine kurze Laufstrecke nicht vom Ausgangssignal unterscheidbar sein.

10 ns Breite erreicht werden. Auch die Anoden-Signale waren fast gänzlich frei von hochfrequenten Störungen und glichen weitgehend einer Gauß-Funktion. Das ist wichtig, um zum einen die Auflösung der Flugzeit zu verbessern und zum anderen Pulse zu verhindern, die nicht von tatsächlichen Einschlägen von Teilchen auf dem MCP verursacht werden, sondern etwa durch Reflexionen an Impedanzübergängen oder elektrostatische Aufladung von Bauteilen.

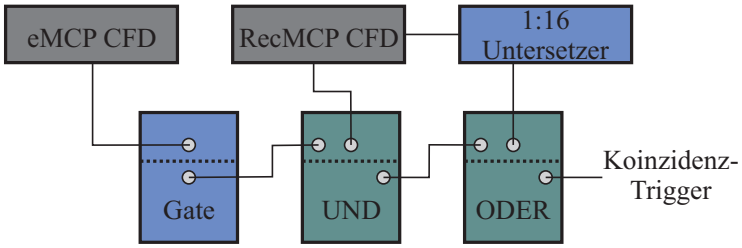


Abbildung 3.25.: Logische Verschaltung des verwendeten Koinzidenz-Triggers. Der „Gate-Generator“ wurde jeweils auf die Flugzeit des zweifach geladenen Ions eingestellt - mit ausreichender Breite des Fensters.

Außerdem wurde ein Koinzidenz-Trigger verwendet, um große Datenraten aufgrund der Nutzung von ADCs zu verhindern. Von gesteigertem Interesse waren in den vorliegenden Experimenten vor allem Doppelionisationsereignisse. Daher wurde mit Hilfe eines „Gate-Generators“ per elektronischer Logikverschaltung ab dem Detektionszeitpunkt eines Elektrons[18] ein zeitliches Fenster erzeugt, welches auf die Flugzeit der zweifach positiven Ionen eingestellt war. Nur Ionen, die innerhalb dieses Fensters detektiert wurden, lösten einen Trigger-Impuls aus (logische Schaltung siehe Abb. 3.25). Zusätzlich wurde noch jedes 16. Ereignis unabhängig von der Flugzeitdifferenz Elektron-Ion aufgenommen, da sowohl die Einfachionisation als auch das Doppel- zu Einfachionisationsverhältnis wichtige Aufschlüsse über experimentelle Parameter liefern.

3.3.5. Spektrometerdetails

Da das Spektrometer in der Regel auf jedes Experiment maßgeschneidert und damit immer ein Unikat ist, gehört die exakte Geometrie dieses Bauteils nicht zum Standard-COLTRIMS-System. Daher widmen wir uns in diesem Abschnitt dem experimentspezifisch gewählten Spektrometer genauer.
Für alle dargestellten Experimente wurde das gleiche Spektrometer verwendet, welches jedoch auf die Anforderungen der anspruchsvolleren Helium-Messungen optimiert ist. Diese sind unter anderem

[18] Elektronenflugzeiten sind typischerweise kleiner als 200 ns, Ionenflugzeiten betragen mehrere 10 μs. Daher kann das Elektronen-MCP-Signal näherungsweise als Zeitpunkt des Laserpulses verwendet werden.

(A 1) Möglichst gute Ionenimpulsauflösung in allen drei Dimensionen, um mit einem gemessenen Elektron und zweifach geladenem Ion den Impuls des zweiten Elektrons berechnen zu können ($\Delta p_{Ion} < 0,1\ a.u.$).

(A 2) Möglichst gute Elektronenimpulsauflösung ($\Delta p_{Elektron} < 0,1\ a.u.$).

(A 3) Doppelt, aber auch einfach geladene Ionen müssen trotz ihrer Jetgeschwindigkeit den Detektor erreichen.

(A 4) Elektronen mit bis zu 15 eV Energie sollen unabhängig vom Startimpuls detektiert werden können (also bis zum 5. ATI-Maximum bei 3 eV Photonen).

(A 5) Mögliche messbedingte Phasenraum-Verluste sollen durch gemessene Teile des Phasenraums 1:1 aufgefüllt werden können.

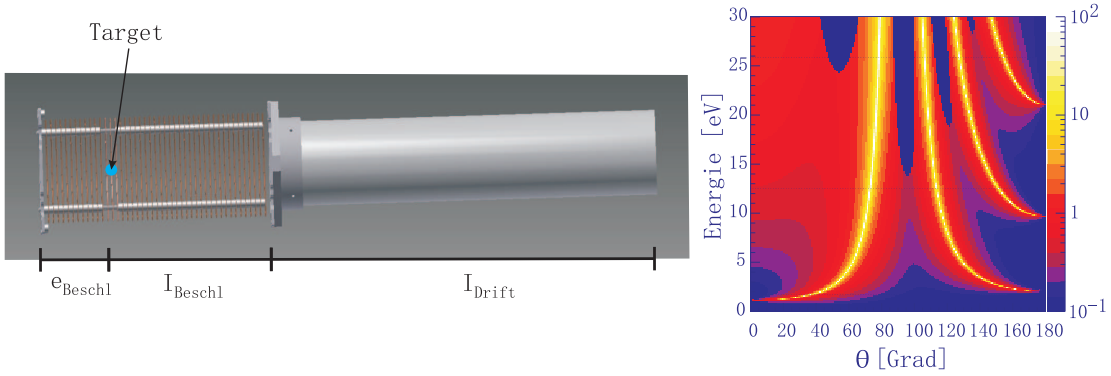


Abbildung 3.26.: Links: Geometrie des verwendeten Spektrometers. Rechts: Die theoretische Impulsauflösung der Elektronen (in eV), die mit Hilfe dieses Spektrometers gemessen werden, abhängig von Energie und Emissionswinkel Θ.

(A 1) kann nur mit einem besonders niedrigen elektrischen Feld und langer Ionenseite realisiert werden. Daher wurde die Kammer um 30 cm in z-Richtung verlängert und eine Beschleunigungsstrecke (Abb. 3.26 ist die gesamte Geometrie des Spektrometers zu entnehmen) für die Ionen von $I_{Beschl} = 18,2\ cm$ sowie eine nachfolgende Driftstrecke von etwa[19] $I_{Drift} = 40\ cm$ verwendet (siehe Abb. 3.21). Bei niedrigen E-Feldern wird (A 2) auch schon mit kurzer Beschleunigungsstrecke realisiert, weshalb die maximal mögliche Strecke von $e_{Beschl} = 7,8\ cm$ völlig ausreichend war. (A 3) beschränkt das niedrigst mögliche elektrische Feld, da unter einem festen E_{min} die Ionen wegen der hohen Jet-Geschwindigkeit v_{Jet} nicht

[19] Die Driftstrecke wurde mit zwei hohlen Aluminium-Röhren mit verschiedenem Innenradius realisiert, die von positiver und negativer z Richtung in die Kammer eingebracht und ineinander geschoben werden mussten. Die Gesamtstrecke ist daher nur mit der Kenntnis der exakten Geometrie in der Kammer berechenbar und wird mit Hilfe von Kapitel 4 aus experimentellen Werten bestimmt.

mehr den Detektor treffen würden. Außerdem führen niedrige E-Felder zu einem Problem auf der Elektronenseite (A 5): Je niedriger das E-Feld, desto länger werden die Elektronenflugzeiten. Dadurch müssen höhere B-Felder angelegt werden, um 15 eV Elektronen auf den Detektor zu lenken, was zu kurzen Gyrationsperioden $\tau_{Gyration}$ der Elektronen führt. Nach exakt einer Gyrationsperiode sind alle Elektronen - unabhängig vom Anfangsimpulsvektor - in der $x-y$-Ebene wieder in einem Ort vereint, nämlich am Startort. Treffen Elektronen zu diesem Zeitpunkt auf dem Detektor auf, kann der Startimpuls in der $x-y$-Ebene nicht mehr rekonstruiert werden. Dadurch können Elektronen mit gewissen Flugzeiten $e_{tof,Loch}$ nicht in der Analyse verwendet werden. Je größer also das Verhältnis $e_{tof,maximal}/\tau_{Gyration}$, desto mehr dieser Flugzeitbereiche ohne Impulsauflösung in $x-y$-Ebene treten auf. Intuitiv könnte man natürlich die Elektronenbeschleunigungs-Strecke verkleinern; das würde allerdings zu schlechterer Impulsauflösung führen. Das Problem kann in gewissen Grenzen aber auch ohne Veränderung des Spektrometers gelöst werden, indem man Symmetrien ausnutzt. Beispielsweise sollten sich bei linear polarisiertem Licht Elektronen, die mit p_z emittiert werden, nicht von Elektronen mit $-p_z$ unterscheiden. Nicht zugängliche Flugzeitbereiche könnten also prinzipiell mit Verteilungen von Flugzeitbereichen „aufgefüllt“ werden, die dem gleichen Betrag von p_z entsprechen. Das ist allerdings nur möglich, wenn dort nicht auch ein nicht zugänglicher Flugzeitbereich liegt. Deshalb müssen B- und E-Feld so abgestimmt werden, dass Elektronen mit $p_z = 0$ nicht exakt zwischen zwei dieser Flugzeitlöcher liegen.
Für alle Messungen wurden $E \approx 1,6\ V/cm$ und $B \approx 6,3$ *Gauß* gewählt[20]. Da Neon unter anderem eine deutlich höhere Masse als Helium hat und aufgrund der Cluster-Eigenschaften[21] bei einer höheren Temperatur expandiert wurde, würde man intuitiv erwarten, dass andere Felder notwendig sind. Dies war aber nicht der Fall: Für die gegebenen Felder erreicht auch einfach geladenes Neon bei $T_v = 125\ K$ den Detektor.
Die theoretischen Impulsauflösungen für die verwendeten Ionen sind Tab. 3.1 zu entnehmen.

Ion	Flugzeitauflösung [a.u./ns]	Ortsauflösung [a.u./mm]
He^+	0,012	0,16
He^{2+}	0,024	0,225
Ne^+	0,012	0,355
Ne^{2+}	0,024	0,502

Tabelle 3.1.: Theoretisch berechnete Impulsauflösungen, aufgeschlüsselt nach den in dieser Arbeit nachgewiesenen Ionen.

[20] Die real wirkenden Felder werden mit Hilfe von Kapitel 4 aus den experimentellen Daten bestimmt.
[21] Unter etwa 100 K geht Neon beim gegebenen Druck an der Düse in den flüssigen Aggregatzustand über, weshalb kein Jet mehr entstehen kann.

4. Auswertungstechnik

Um in der späteren Analyse flexibler arbeiten und experimentelle Fehler verschiedener Art abfangen zu können, werden die gemessenen Daten in ihrer „rohsten“ Form gespeichert: Nur die Zeitpunkte des Eintreffens der Signale an allen Enden der Delay-Line-Anode, der MCPs und der Photodiode sind in den geschriebenen LMF-Dateien verfügbar. Zunächst sollen daraus durch das sogenannte Vorsortieren mit dem Programm **LMF2ROOT**[1] die Flugzeiten und Auftrefforte der Teilchen auf den Detektoren bestimmt werden. Anschließend werden mit Hilfe der **COLAHELL**-Routine (**COL**TRIMS **A**nalysis **Hel**per **L**ibrary) die Impulse der Teilchen berechnet. Damit diese Berechnungen funktionieren, müssen vorher das Spektrometer und die wirkenden Felder kalibriert werden, wofür das **IPA**-Tool (**I**nteractive **P**arameter **A**djustment) zur Verfügung steht. Die Methoden zu den Berechnungen und die anschließend korrigierten experimentellen Fehler werden im Folgenden erläutert.

4.1. Flugzeitberechnung

Die Flugzeit (**TOF**, für **T**ime **O**f **F**light) eines Teilchens ist definiert als die Dauer zwischen dem Zeitpunkt t_{BM} des Ionisationsereignisses und dem Zeitpunkt t_{MCP} der Detektion des Teilchens auf dem MCP. Um t_{BM} möglichst genau zu bestimmen, wird das Eintreffen der Laserpulse (**BM**, für **B**unch**m**arker) direkt vor dem Lasereintrittsfenster mit einer Photodiode gemessen. Von dort aus müssen die Pulse nur noch etwa $s = 30\ cm$ bis zum Reaktionsvolumen zurücklegen, was zu einer um rund 1 ns zu langen gemessenen Flugzeit führt (engl. „Offset“ für Verschiebung). Zusätzlich sind die Kabelstrecken von der Photodiode bzw. vom MCP bis zum Computer nicht exakt gleich lang. Die Zeitdifferenz $t_{MCP} - t_{BM}$ setzt sich also zusammen aus der Flugzeit und den unterschiedlichen Laufzeiten der beiden Signale bis zum Computer. Dadurch müssen die Zeitverschiebungen $t_{0,Elektron}$ und $t_{0,Ion}$ für beide Detektoren separat als erstes korrigiert werden und man erhält für die Flugzeitberechnung

$$TOF = t_{MCP} - t_{BM} + t_0 \quad . \tag{4.1}$$

In den meisten Fällen können die Verschiebungen t_0 auf etwa 1 ns genau aus den Daten ermittelt werden. Hilfreich dabei sind Photonen, die in der Kammer streuen und am MCP

[1] LMF2ROOT wurde in der Frankfurter Arbeitsgruppe entwickelt und umfasst unter anderem die Konvertierung von LMF- in Root-Dateien sowie die Projekte COLAHELL und IPA.

eine Elektronenlawine auslösen. Diese führen zu einem Photonenmaximum in der Flugzeitverteilung, dessen „Flugzeit“ etwa der Verschiebung entspricht. Besonders deutlich zu erkennen ist das Maximum im Flugzeit-Ort-Spektrum, in dem der Auftreffort der Teilchen in einer Richtung (x oder y) gegen deren Flugzeit aufgetragen ist. Hier manifestiert sich das Photonenmaximum als eine über die gesamte Ortsrichtung homogene Verteilung bei $TOF = t_0$.
In den Experimenten wurden Laserpulse mit einer Repetitionsrate von 100 kHz verwendet. Das entspricht einem zeitlichen Abstand der Pulse von 10 μs. Grob abgeschätzt betragen die Flugzeiten der Ionen in den Messungen $TOF_{He^+} \approx 20,5\ \mu s$, $TOF_{He^{2+}} \approx 14,5\ \mu s$ sowie $TOF_{Ne^+} \approx 46\ \mu s$, $TOF_{Ne^{2+}} \approx 32,5\ \mu s$. Die Aufnahmefenster - also das zeitliche Intervall, innerhalb welchem für ein Ereignis alle Signale registriert wurden - waren für He $[-23\ \mu s; 5\ \mu s]$ und für Ne $[-52\ \mu s; 1\ \mu s]$, wobei $t = 0$ jeweils der Zeitpunkt der Detektion eines Ions ist. Das führt zu dem häufig auftretenden Problem, dass nicht sofort ersichtlich ist, welches Signal der Photodiode zu dem Laserpuls gehört, der die Ionisation des Atoms herbeigeführt hat. Im Fall der Heliummessungen fielen 2 oder 3 Bunchmarker-Signale in das Fenster, bei der Neonmessung sogar 5 oder 6. Am Beispiel von Neon soll hier kurz ausgeführt werden, wie für jedes Ereignis das zugehörige Signal der Photodiode - also der Zeitpunkt der Ionisation - gefunden wurde.

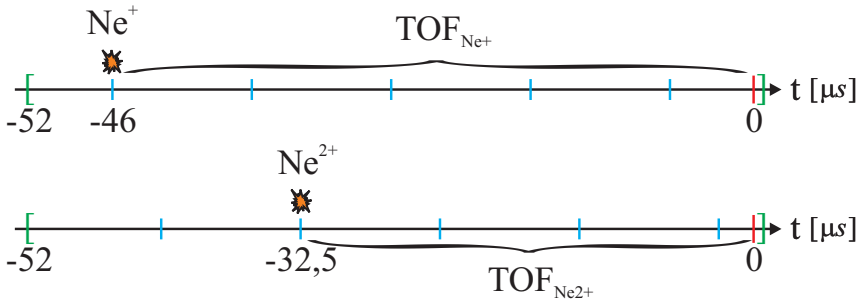


Abbildung 4.1.: Zeitschemata der Aufnahmefenster in der Neon-Messung. Oben: für gemessenes Ne^+, unten: für Ne^{2+}. Das Ionisationsereignis erfolgt am orangen Symbol, den Zeitnullpunkt legt jedoch erst die Detektion des Ions am MCP fest (rot). In blau sind die Zeitpunkte der Signale der Photodiode - also des Eintreffens der Laserpulse in der Kammer - gekennzeichnet, in grünen Klammern das Aufnahmefenster.

Das Aufnahmefenster (siehe Abb. 4.1) wurde so gewählt, dass im Fall der Einfachionisation das zeitlich zuerst gemessene Photodiodensignal im Fenster auch zu dem Puls gehört, der zur Ionisation führte. Im Fall der Doppelionisation ist es jedoch das zweite, weil die Flugzeit deutlich kürzer ist. Gemessen werden jedoch ausschließlich Zeitpunkte des Eintreffens von Signalen. Deshalb hat man keine direkte Information über den Ladungszustand des Ions und kann nicht direkt entscheiden, welches Signal der Photodiode das zugehörige ist. Daher wird folgende Variable eingeführt:

$$\eta = mod(-t_{BM1}; 10) \quad , \tag{4.2}$$

wobei t_{BM1} der Zeitpunkt des ersten Photodiodensignals relativ zur Ionendetektion in Mikrosekunden ist. Gilt beispielsweise $\eta < 4\ \mu s$, handelt es sich um ein Ne^{2+}-Ion, andernfalls um Ne^{+} und es kann jeweils das zweite bzw. erste gemessene Photodiodensignal als Referenz identifiziert werden. Ne^{2+} und Ne^{+} sind also auch noch unterscheidbar, wenn man die Flugzeiten mit Modulo 10 betrachtet, da sie hier nicht überlappen.

4.2. Berechnung des Auftrefforts

Die Messung des Auftrefforts mit Hilfe der Hex-Anoden erfolgt nach dem Delay-Line-Prinzip (siehe Kap. 3.3.4): Die Laufzeit t_{sum} eines Signals, welches an einem Ende eines Drahtpaares startet und zum anderen Ende propagiert, ist konstant. Wird ein Signal dagegen an einem *beliebigen* Ort auf dem Drahtpaar induziert, breitet es sich in beide Richtungen aus, wird an den jeweiligen Enden (1 und 2) registriert und es können bei Kenntnis der Startzeit[2] t_{MCP} auch die Laufzeiten t_1, t_2 angegeben werden. Die Summe der beiden Laufzeiten enstpricht dann wieder der Gesamtlaufzeit t_{sum}. Außerdem kann aus der Differenz der Laufzeiten auf den eindimensionalen Auftreffort senkrecht zur Wicklungsrichtung des Drahtes (siehe Abb. 3.23) zurückgeschlossen werden, an dem das Signal induziert wurde. Dafür ist aber ein Skalenfaktor zur Umrechnung von einer Laufzeit (in ns) in einen Ort (in mm) notwendig, der für jede Drahtebene (Layer) individuell bestimmt werden muss. So ergibt sich jeweils für die eindimensionalen Orte u, v, w auf den gleich benannten Layern

$$u = u_{scale} \cdot (t_{u1} - t_{u2}) \tag{4.3}$$

$$v = v_{scale} \cdot (t_{v1} - t_{v2}) \tag{4.4}$$

$$w = w_{scale} \cdot (t_{w1} - t_{w2}) + w_{offset} \quad , \tag{4.5}$$

wobei w_{offset} die Ortsverschiebung des dritten Layers gegenüber dem Nullpunkt der beiden ersten Layer ist. In der Regel wird u_{scale} einfach aus der Zeitdifferenzverteilung $t_{diff} = t_{u1} - t_{u2}$ bestimmt. Deren Gesamtbreite Δt_{diff} muss nämlich exakt dem Durchmesser des verwendeten MCPs entsprechen. Bei einem 80 mm MCP erhält man $u_{scale} = 80\ mm/\Delta t_{diff}$. Die anderen Skalenfaktoren können prinzipiell ebenso bestimmt werden, allerdings übernimmt eine Routine in LMF2ROOT deren Berechnung und bestimmt iterativ auch w_{offset}.
Die drei eindimensionalen Orte müssen nun in einen zweidimensionalen Ort in der Detektorebene überführt werden. Das gelingt durch folgende Gleichungen:

[2]Das MCP-Signal dient als Startzeit, da zu diesem Zeitpunkt die Elektronenwolke erzeugt wird, die kurz darauf das Spannungssignal induziert.

$$x_{uv} = u + x_{shift} \tag{4.6}$$

$$y_{uv} = \frac{1}{\sqrt{3}}(u - 2v) + y_{shift} \tag{4.7}$$

$$x_{uw} = u + x_{shift} \tag{4.8}$$

$$y_{uw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(2w - u) + y_{shift} \tag{4.9}$$

$$x_{vw} = (v + w) + x_{shift} \tag{4.10}$$

$$y_{vw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(w - v) + y_{shift} \quad . \tag{4.11}$$

x_{shift} und y_{shift} sind Korrekturparameter, die verwendet werden, um die Impulsverteilungen in den Ursprung $< p_x >= 0, < p_y >= 0$ zu verschieben. $< p_z >= 0$ wurde schon mit dem Korrekturparameter t_0 gewährleistet. Durch Messung dreier Koordinaten u, v, w in einer zweidimensionalen Fläche ist es möglich, auch beim Fehlen einer Koordinate den Ort zu bestimmen. Und mit der Kenntnis von t_{sum} der Drahtebenen kann sogar bei der Messung nur einer der beiden Laufzeiten t_1 oder t_2 eines Layers die jeweils andere berechnet und die Koordinate für diesen Layer bestimmt werden. Diese Aufgaben übernimmt die umfangreiche **RESORT**-Routine in LMF2ROOT, die nach manueller Konfiguration in einem zeitaufwändigen Verfahren alle Möglichkeiten der Rekonstruktion überprüft und die beste verwendet.

4.3. Impulsberechnung

4.3.1. Ionen

Ionen weisen im vorliegenden Spektrometer Flugzeiten von mehreren 10 μs auf. In dieser Zeit sind sie näherungsweise homogenen E- und B-Feldern ausgesetzt, die in z-Richtung orientiert sind, wobei das B-Feld aufgrund der großen Masse der Ionen vernachlässigbare Auswirkungen auf deren Trajektorie hat. Die zum Spektrometer relativen Startgeschwindigkeiten der Atome $v_{y,0} = v_{Jet}$, die die Ionen auch nach der Ionisation beibehalten, resultieren in einer Ortsverschiebung der auftreffenden Teilchen auf dem Detektor. Da die relativen Unterschiede der Flugzeiten der Ionen sehr klein sind, kann diese Ortsverschiebung mit den konstanten Verschiebeparametern x_{shift} und y_{shift} beseitigt werden. Daher kann von vor der Ionisation ruhenden Atomen ausgegangen werden, die durch den Ionisationsvorgang die zu vermessenden Anfangsimpulse p_A erhalten. Anschließend werden diese Ionen nur noch durch das elektrische Feld in z-Richtung beschleunigt. In Flugzeitrichtung ergibt sich durch die beiden Feldbereiche (Beschleunigungsstrecke s_B und Driftstrecke s_D) folgende Gleichung[3]:

[3] E ist hierbei der Betrag von $\vec{E}$ unter der Annahme, dass $\vec{E}$ exakt in z-Richtung zeigt. Gleiches gilt im anschließenden Abschnitt für das $\vec{B}$-Feld.

$$s_{ges} = s_B + s_D = \frac{p_{A,z}}{m} t_B + \frac{qE}{2} t_B^2 + \frac{p_{A,z} + qEt_B}{m} t_D \tag{4.12}$$

mit $TOF_{Ion} = t_B + t_D$ und dem Anfangsimpuls des Ions in z-Richtung $p_{A,z}$. Außer $p_{A,z}$ enthält diese Gleichung auch die unbekannten Flugzeiten t_B und t_D in den beiden Feldbereichen. Daher wird $p_{A,z}$ in diesem Fall durch COLAHELL iterativ bestimmt.
$p_{A,x}$ und $p_{A,y}$ können durch eine gleichförmige Bewegung beschrieben werden und man erhält zur Berechnung dieser Impulskomponenten

$$p_{A,x} = \frac{mx}{TOF_{Ion}} \tag{4.13}$$

$$p_{A,y} = \frac{my}{TOF_{Ion}} \quad . \tag{4.14}$$

4.3.2. Elektronen

Die Impulsberechnung der z-Komponente für Elektronen stellt sich wegen der fehlenden Driftstrecke deutlich einfacher dar. Für die Beschleunigungsstrecke s_B gilt hier

$$s_B = \frac{p_{A,z}}{m} TOF_{Elek} + \frac{qE}{2m} TOF_{Elek}^2 \quad . \tag{4.15}$$

Daher folgt für $p_{A,z}$

$$p_{A,z} = \frac{s_B m}{TOF_{Elek}} - \frac{qE}{2m} TOF_{Elek} \quad . \tag{4.16}$$

Die Masse der Elektronen ist um mehr als einen Faktor von 10^3 niedriger als die der Ionen. Dadurch kann das in z-Richtung orientierte magnetische Feld nicht mehr vernachlässigt werden. Dieses führt in x- und y-Richtung zu einer die gleichförmige Bewegung überlagernden Gyration. Da das elektrische Feld ebenfalls nur in z-Richtung wirkt, ergeben sich - für ein in positive z-Richtung zeigendes B-Feld - folgende Auftrefforte x, y auf dem Detektor:

$$x(TOF_{Elek}) = \frac{p_{A,x}}{m\omega}(cos(\omega TOF_{Elek}) - 1) + \frac{p_{A,y}}{m\omega} sin(\omega TOF_{Elek}) \tag{4.17}$$

$$y(TOF_{Elek}) = \frac{p_{A,y}}{m\omega}(1 - cos(\omega TOF_{Elek})) + \frac{p_{A,x}}{m\omega} sin(\omega TOF_{Elek}) \quad , \tag{4.18}$$

wobei $\omega = \frac{q}{m} \cdot B$ die Gyrationsfrequenz ist. Mit $a = \frac{1-cos(\omega TOF_{Elek})}{\omega}$ sowie $b = \frac{sin(\omega TOF_{Elek})}{\omega}$ lässt sich das auflösen zu

$$p_{A,x} = \frac{m(bx - ay)}{a^2 + b^2} \tag{4.19}$$

sowie

$$p_{A,y} = \frac{m(-ax - by)}{a^2 + b^2} \quad . \tag{4.20}$$

4.4. Parameterbestimmung - Kalibrierung mit IPA

Für die Impulsberechnungen im vorhergehenden Abschnitt ist die genaue Kenntnis aller Parameter notwendig. Diese sind für

die Elektronen: t_0, x_{Shift}, y_{Shift}, $x_{Stretch}$, $y_{Stretch}$, $ALL_{Stretch}$, $|\vec{E}|$, $|\vec{B}|$, s_B, Richtung von $\vec{B}$, Drehung des Detektors relativ zum Laborkoordinatensystem,

die Ionen: t_0, x_{Shift}, y_{Shift}, $x_{Stretch}$, $y_{Stretch}$, $ALL_{Stretch}$, $|\vec{E}|$, s_B, s_D, Drehung des Detektors relativ zum Laborkoordinatensystem.

Die Stretch-Faktoren $x_{Stretch}$, $y_{Stretch}$, $ALL_{Stretch}$ ermöglichen eine Korrektur, die die Verkippung der Detektoren ausgleicht oder Fehler in der Detektor-Kalibrierung bereinigt. Die meisten der aufgezählten Parameter sind durch die Geometrie des Spektrometers und angelegte Spannungen grob bekannt. Allerdings müssen sie so gut wie möglich kalibriert sein, um die bestmögliche Auflösung der Messgrößen zu gewährleisten. Dafür steht das hilfreiche Werkzeug IPA bereit, in dem die Parameter leicht abgeändert werden können und für diese neuen Parameter nach kurzer Wartezeit die berechneten Impulse gezeigt werden. So kann iterativ ein Parametersatz gefunden werden, der bekannte physikalische Gesetze bestmöglich reproduziert. Dazu gehören unter anderem Symmetrien in den Impulsverteilungen, Energie- und Impulserhaltung sowie der energetische Abstand zweier ATI-Maxima. Beispielsweise stellen letztere eine gute Grundlage zur Kalibrierung dar: Sie zeigen scharfe Maxima, deren Energie unabhängig von den Winkeln Θ und Φ konstant sein muss.
Jedoch gestaltet sich die Suche nach diesem Satz schwieriger, je mehr Parameter veränderbar sind. Es ist also durchaus ratsam, einige davon durch eine Kalibrierungsmessung relativ genau zu bestimmen. Die folgenden Abschnitte zeigen drei dieser Kalibrierungen.

Magnetfeld

Die Elektronen vollführen im Magnetfeld Gyrationsbahnen, deren Radius vom Startimpuls abhängt. Nach einer Gyrationsperiode T_{Gyr} jedoch kehren alle Elektronen wieder zu ihrem Startpunkt in der $x-y$-Ebene zurück. Im Flugzeit-Ort-Spektrum führt das zu Knoten, die den zeitlichen Abstand von T_{Gyr} aufweisen. Misst man diesen Abstand, kann über

$$|B| = \frac{2\pi m}{eT_{Gyr}} \tag{4.21}$$

das B-Feld berechnet werden.

Relative Drehung der Detektoren

Das Koordinatensystem der berechneten Orte der beiden Detektoren hängt von deren Einbau in die Apparatur ab. Um diese absolute Ausrichtung der Detektoren experimentell zu bestimmen, werden in y-Richtung polarisierte Laserpulse verwendet und kein magnetisches Feld angelegt. Dadurch erfolgt keine Gyration der Elektronen in $x-y$-Richtung und die Polarisationsrichtung ist auf dem Elektronendetektor direkt erkennbar. Die Ausrichtung des Ionendetektors kann auf die gleiche Weise bestimmt werden, wenn die Ortsauflösung genügend gut ist. Andernfalls wird die Verschiebung des Auftrefforts durch die konstante Jet-Geschwindigkeit ausgenutzt, indem durch die Mittelpunkte der einfach bzw. doppelt geladenen Ionenverteilungen und den Mittelpunkt des Detektors eine Gerade gelegt wird, die der y-Achse entspricht.

Elektrisches Feld

Wie schon in den vorhergehenden Abschnitten gesehen, hängt der Impuls in z-Richtung sowohl vom elektrischen Feld als auch von der Beschleunigungsstrecke ab. Eine Verkleinerung der Beschleunigungsstrecke s_B bewirkt hierbei das gleiche wie eine Erhöhung des E-Feldes. Daher lässt sich das E-Feld mit Hilfe von IPA prinzipiell nicht unabhängig von s_B kalibrieren. Jedoch ist s_B durch genaues Messen auf wenige Millimeter genau bestimmbar, wodurch auch der Wert des E-Feldes eingeschränkt wird. Ebenso kann die Gesamtlänge des Spektrometers und auch die daran angelegte Spannung gemessen und damit ein Richtwert für $|\vec{E}|$ bestimmt werden. Zusätzlich muss das gefundene E-Feld für alle Kanäle der Messung (im Heliumfall also beispielsweise He^+ und He^{2+}) mit sinnvollen Werten für t_0 zu um $p_{z,Ion} = 0$ verteilten Impulsen führen. Die übliche Kalibrierung über einen Aufbruch von O_2 war nicht möglich, da nicht alle dazu benötigten Fragmente gleichzeitig mit dem verwendeten Spektrometer und den angelegten Feldern detektiert werden konnten.

4.4.1. Korrekturen

Obwohl Sorgfalt und Gewissenhaftigkeit bei jedem komplizierten Experiment an erster Stelle stehen, kann nicht auf alle Eventualitäten geachtet und ebenso wenig jede Fehlerquelle eliminiert werden. Die hochdifferentiellen Daten erlauben jedoch nachträgliche Korrekturen vieler Fehler. Auf die wichtigsten Korrekturen der vorliegenden Messungen wird im Folgenden eingegangen.

Zeitsummenkorrektur

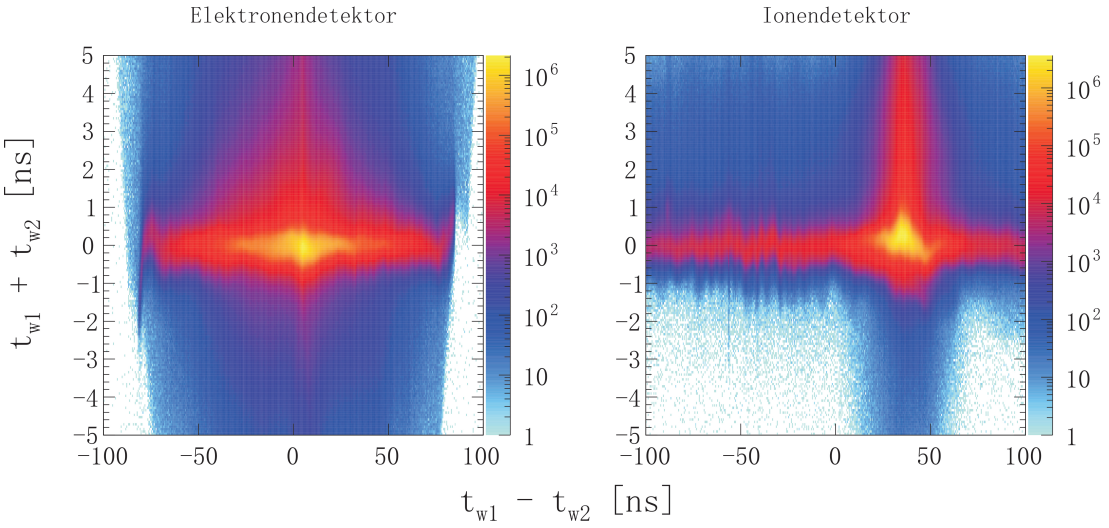


Abbildung 4.2.: Dargestellt sind für beide Detektoren jeweils die Zeitsumme der Signale an beiden Enden des w-Layers gegen deren Differenz (gleichbedeutend mit dem Ort auf dem Detektor). Links: Elektronendetektor, rechts: Ionendetektor.

Schon während des Vorsortierens fallen Unregelmäßigkeiten in den Daten auf. Unter anderem wurde in unseren bisherigen Betrachtungen davon ausgegangen, dass die Zeitsumme t_{sum} für alle Auftrefforte der Elektronenwolke auf dem Detektor den gleichen Wert hat. Das ist allerdings nicht exakt der Fall, da unter anderem die Drähte eines Layers nicht perfekt parallel verlaufen. Somit ergeben sich abhängig vom Ort leicht unterschiedliche Zeitsummenwerte. Das muss korrigiert werden, damit z.B. ein fehlendes Signal aus dem Signal des anderen Endes des Layers mit Hilfe einer bekannten und konstanten Zeitsumme berechnet werden kann. Für diesen Zweck ist die Zeitsummenkorrektur in der **RESORT**-Routine eingebaut, die während der Kalibrierung der Detektoren Korrekturtabellen erstellt, mit welchen beim Vorsortieren ortsabhängig die Zeitsumme verschoben wird. In Abb. 4.2 sind dafür beispielhaft aus einer der Messungen die Zeitsummen gegen die Zeitdifferenzen der beiden Detektoren für den w-Layer aufgetragen, nachdem die Zeitsummenkorrektur angewendet wurde.

$\vec{E} \times \vec{B}$-Drift

An **COLAHELL** werden zur Berechnung der Elektronen-Impulse nur die Beträge der $\vec{E}$- und $\vec{B}$-Felder übergeben. Schlussendlich geht man also davon aus, dass diese nur in z-Richtung orientiert sind. Das ist natürlich experimentell nur näherungsweise der Fall und führt zu einem signifikanten Effekt: die $\vec{E}\times\vec{B}$-Drift. Sind $\vec{E}$- und $\vec{B}$-Feld nicht exakt parallel

ausgerichtet ($\alpha_{EB} \neq 0$), führt das zu einer gleichförmigen Driftbewegung der Elektronen senkrecht zu beiden Feldern, welche mit[4]

$$v_{Drift} = \frac{\vec{E} \times \vec{B}}{\vec{B}^2} \tag{4.22}$$

bestimmt werden kann. In erster Näherung kann dies bei kleinen Winkeln α_{EB} allein durch eine gleichförmige Bewegung in der $x-y$-Ebene beschrieben werden. Diese führt wiederum zu einer flugzeitabhängigen Änderung des Auftrefforts, der im Flugzeit-Ort-Spektrum deutlich erkennbar ist. Die Knoten der Verteilung, die jeweils exakt im Abstand einer Gyrationsperiode auftreten, sollten ohne $\vec{E}\times\vec{B}$-Drift immer die $x-y$-Koordinaten des Reaktionsorts aufweisen, liegen aber mit $\vec{E}\times\vec{B}$-Drift auf einer Geraden mit einer Steigung $m \neq 0$.

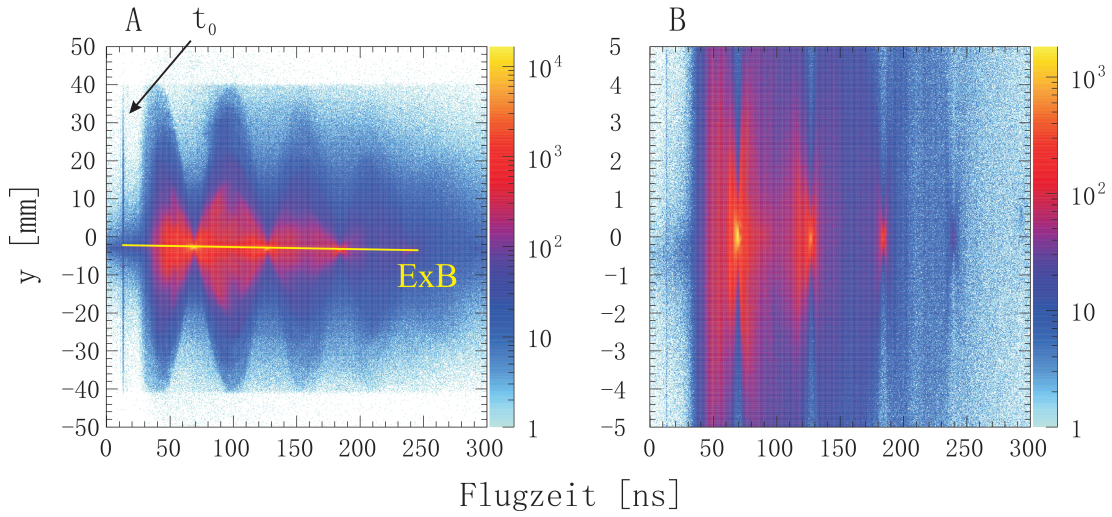


Abbildung 4.3.: Abszisse: Flugzeit des Elektrons. Ordinate: y-Koordinate des Auftrefforts auf dem Detektor. (A) Beispiel einer ExB-Drift aus der Helium-Messung. Gut zu erkennen sind die Streuphotonen bei t_0 und die näherungsweise lineare Verschiebung der Knoten durch die Drift. (B) Korrigierte Drift mit zehnfach vergrößerter Ordinate.

Zur Veranschaulichung ist in Abb. 4.3 ein Flugzeit-Ort-Spektrum aus der Helium-Messung gezeigt. Zunächst fallen die Streuphotonen bei t_0 ins Auge, deren „Flugzeit“ näherungsweise den Zeitpunkt der Ionisation wiedergibt. Außerdem liegen die Knoten relativ genau auf einer Geraden, welche durch zwei der Knoten bestimmt werden kann. Bei näherer

[4]In der vom Autor betreuten Bachelorarbeit von Mario Krüger (Krü15) finden sich ausführliche Rechnungen und Überlegungen zur ExB-Drift.

Betrachtung zeigt sich jedoch eine Abweichung für jene Knoten, die nicht zur Erstellung dieser Geraden genutzt wurden. Der Grund hierfür liegt in leichten Inhomogenitäten des Magnetfelds abhängig von z, was sowohl zu leicht unterschiedlichen Gyrationsperioden $t_{Gyr} = t_{Gyr}(z)$ - also zeitlichen Abständen zwischen den Knoten - als auch zu etwas anderen $v_{Drift} = v_{Drift}(z)$ führt. Daher wurden für jeden Zwischenraum zwischen zwei Knoten verschiedene Geradengleichungen verwendet. Außerdem ist zu erkennen, dass der Schnittpunkt der eingezeichneten $\vec{E} \times \vec{B}$-Korrekturgeraden mit der Streuphotonenverteilung nicht bei $y = 0$ liegt. Mit Hilfe der $\vec{E} \times \vec{B}$-Korrektur, die für x und y separat durchgeführt wird, wird also auch schon erreicht, dass der Reaktionsort im Ursprung der $x - y$-Ebene des Laborkoordinatensystems liegt.

Zeitliche Nullpunktbewegung

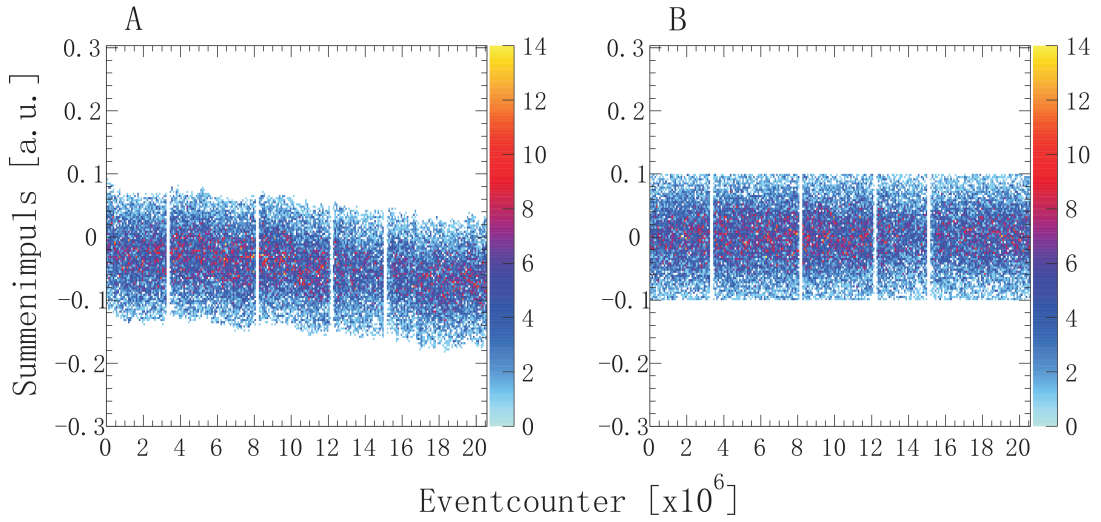


Abbildung 4.4.: Darstellung der z-Summenimpulse aller Teilchen aus Heliumdoppelionisationsereignissen aufgetragen gegen die Messzeit. Abszisse: fortlaufende Nummerierung der Ereignisse, siehe Text. Ordinate: Summenimpuls von He^{2+}-Ion und beiden Elektronen ($= p_{Ion,z} + p_{Elektron1,z} + p_{Elektron2,z}$). (A) Unkorrigierte und (B) korrigierte zeitliche Entwicklung des Summenimpulses. Die vertikalen Schnitte wurden manuell hinzugefügt, um sehr schnelle zeitliche Sprünge, die nicht korrigiert werden konnten, aus der Analyse auszuschließen.

Bei einer Messung, die mehrere Tage oder gar Wochen dauert, müssen zeitlich langsam auftretende Änderungen experimenteller Parameter betrachtet und üblicherweise auch korrigiert werden. So kann sich beispielsweise die von einer Spannungsquelle bereitgestellte Spannung durchaus sukzessive verändern, was nur bei langen Messungen auffällt. Eine sich

ändernde Spannung am Spektrometer würde beispielsweise zu einer zeitlichen Abhängigkeit der Flugzeit von Teilchen mit identischen Impulsen führen.
Eine Aussage über die Zeit, die nach dem Start der Messung vergangen ist, liefert softwareseitig der sogenannte Eventcounter. Dieser zählt jedes registrierte Ereignis und versieht es mit einer fortlaufenden Nummer. So ist man in der Lage, wie in Abb. 4.4 eine beliebige Observable in Abhängigkeit von der Messzeit zu kontrollieren.
Im vorliegenden Fall ist das der Summenimpuls des He^{2+}-Ions und der beiden emittierten Elektronen nach einem Doppelionisationsereignis, der wegen der Impulserhaltung zu jeder Zeit des Experiments Null betragen muss (im Rahmen der experimentellen Auflösung). Klar zu erkennen ist eine statistische Drift des Summenimpulses, die auf eine Änderung der Spektrometerspannung zurückgeführt wurde. Diese Änderung ist signifikant für die Flugzeit von Ionen, für Elektronen jedoch aufgrund deren kleiner Flugzeit zu vernachlässigen. Daher werden die folgenden Korrekturen auf die z-Komponente der Ionen angewendet. Da die statistische Drift sehr langsam abläuft, kann eine robuste Korrektur des Mittelwerts verwendet werden. Dafür wird eine globale Variable $Corr_{he2}$ eingeführt, die bei jedem Ereignis leicht durch den Wert des Summenimpulses verändert wird:

$$Corr_{he2} = Corr_{he2} + (p_{Ion,z} + p_{Elektron1,z} + p_{Elektron2,z})/100 \quad . \tag{4.23}$$

Der Nenner 100 ist hierbei iterativ bestimmt. Zu große Werte führen zu einer stark verzögerten Korrektur, zu kleine Werte zu einem „Überschießen“. Dieser sich langsam verändernde Korrekturwert wird anschließend zu Beginn jedes Ereignisses vom aktuellen z-Impuls des Ions abgezogen.
Ähnliche Korrekturen wurden auch für die Ortsnullpunkte von Ionen- und Elektronendetektor durchgeführt.

Auffüllen fehlender Impulsraumkomponenten

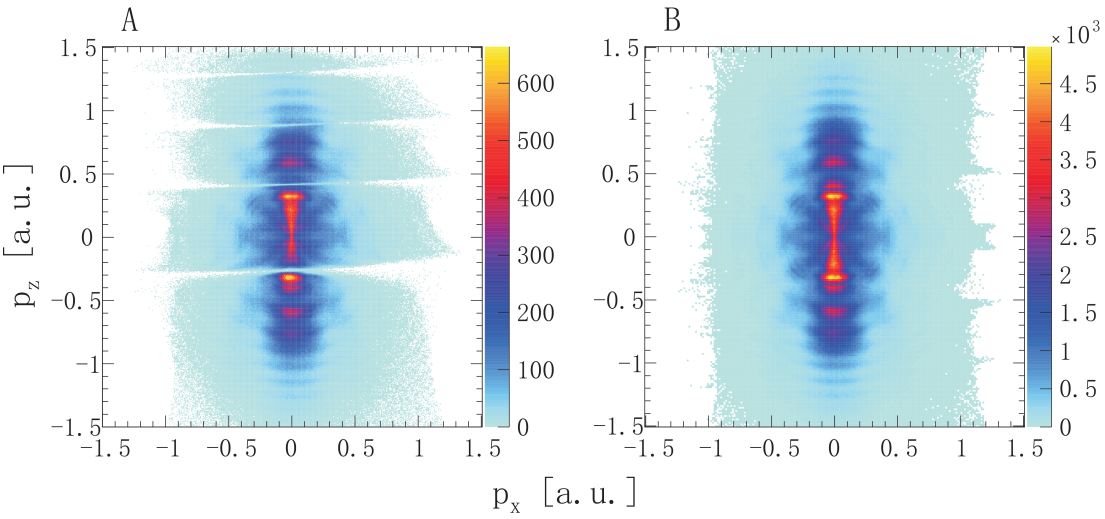


Abbildung 4.5.: $x-z$-Elektronenimpulsverteilung nach Einfachionisation. (A) Impulsverteilung mit Gyrationsknoten, sichtbar als horizontale Schnitte. (B) Impulsverteilung, bei der fehlende Teile aus jeweils anderer Halbebene kopiert und aufgefüllt wurden.

Die verlangte hohe Auflösung der Ionen hat ein niedriges E-Feld zur Folge, wodurch bei dem benötigten B-Feld zur 4π-Impulsmessung für Elektronen bis 15 eV einige Knoten der Gyrationsbewegung in den interessanten Flugzeitbereich der Elektronen fallen. Diese führen zu Löchern in der gemessenen Impulsverteilung, wie in Abb. 4.5 (A) zu sehen ist. Wählt man E- und B-Feld derart, dass diese Löcher asymmetrisch um $p_z = 0$ liegen, können die fehlenden Impulskomponenten aus der jeweils gegenüberliegenden Halbebene aufgefüllt werden. Dieses Verfahren wurde in der vorliegenden Arbeit mehrfach angewendet, unter anderem in Abb. 4.5 (B).

4.5. Analyse und Untergrundunterdrückung

Nachdem die bekannten Fehler korrigiert und die Impulse mit bestmöglicher Genauigkeit berechnet wurden, kann die physikalische Analyse beginnen. Es muss sichergestellt werden, dass möglichst alle ausgewählten Ereignisse tatsächlich zu dem Prozess gehören, der untersucht werden soll. Sowohl für Helium als auch für Neon ist das in der vorliegenden Arbeit die Doppelionisation. Es werden also zu jedem doppelt geladenen Ion beide emittierten Elektronen gesucht. Das ist auf vielfache Weise eine nicht-triviale Aufgabe, da zum einen nicht alle emittierten Elektronen wegen der Nachweiseffizienz auf den Detektoren $\eta < 1$

nachgewiesen werden können. Zum anderen können auch mehr als zwei Elektronen im betreffenden Flugzeitfenster zu finden sein. Die Aufgabe ist also zunächst, (a) die Ionen als zweifach geladene und aus dem Jet stammende Teilchen zu identifizieren und danach (b) zwei Elektronen zu finden, die mit hoher Wahrscheinlichkeit von diesem Ion stammen. Im Folgenden wird beispielhaft die Helium-Messung bei kleinster Intensität betrachtet.

4.5.1. Ionenauswahl

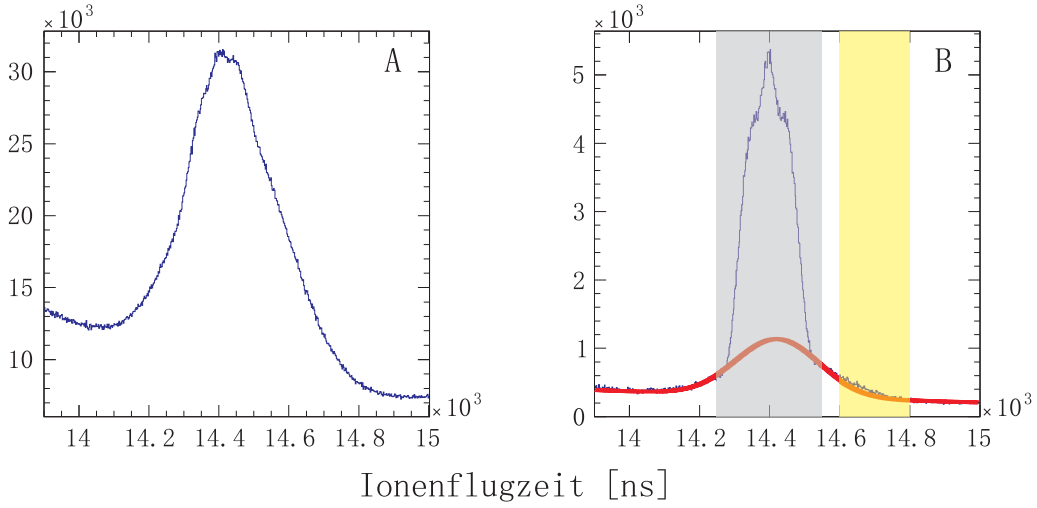


Abbildung 4.6.: Flugzeitverteilung für Ionen mit $m/q = 2$ bei der Heliummessung (A) ohne Schnitt und (B) mit Schnitt auf die Ortskoordinaten des Jetflecks. Der grau eingefärbte Bereich repräsentiert den Flugzeitschnitt in der Auswertung, Ereignisse im gelb eingefärbten Bereich wurden zur Untergrundrekonstruktion verwendet. In rot ist ein Fit an den Untergrund zu sehen.

Während der Messung wurden Ionen mit einer Rate von etwa 5 kHz detektiert. Der Großteil davon sind He^+-Ionen aus dem Jet, nur etwa jedes Tausendste ein He^{2+}-Ion. Hinzu kommen ionisierte Restgasatome. Die offensichtlich einfachste Möglichkeit, Ionen aus dem Jet von anderen Atomsorten zu trennen, ist, das vorhandene Spektrometer als Flugzeitmassenspektrometer zu verwenden. Denn abhängig vom m/q-Wert der Ionen ergeben sich charakteristische Flugzeiten für jede Spezies. Mit einem Flugzeitschnitt kann also ein bestimmtes m/q ausgewählt werden. Ne^{2+}-Ionen bieten mit $m_{Ne^{2+}}/q_{Ne^{2+}} = 10$ ein Alleinstellungsmerkmal gegenüber den typischen Restgasatomen. Für Helium mit $m_{He^{2+}}/q_{He^{2+}} = 2$ finden sich allerdings signifikant viele Wasserstoffmoleküle im Fokus, die nach Ionisation zu H_2^+ ebenfalls etwa $m_{H_2^+}/q_{H_2^+} = 2$ aufweisen. Wie schon in Kap. 3.3 angesprochen, wurde im Vorfeld darauf geachtet, H_2 bestmöglich aus der Apparatur zu entfernen. Unweigerlich stellt es jedoch immer den größten Teil des Restgases, da es auch durch kleinste Öffnungen

und aus der Oberfläche des Stahls diffundieren kann.
Um diesen Untergrund in der Analyse zu unterdrücken, nutzt man die Eigenschaften des Gasjets: Alle Targetatome haben vor der Ionisation einen sehr genau definierten Impuls, während Restgasatome eine breite Geschwindigkeitsverteilung aufweisen (siehe Kap. 3.3.3). Dadurch landen Ionen, die aus dem Jet stammen, auf einem kleinen Bereich des Detektors (Jetfleck). H_2^+-Ionen aus dem Restgas verteilen sich jedoch auf dem gesamten Detektor und können durch einen engen Schnitt um den Jetfleck unterdrückt werden (siehe Abb. 4.6). Gut zu erkennen ist in Abb. 4.6 (B) der breite, gaußförmige Untergrund des Restgases (rot), der sich etwa über den Flugzeitbereich $[14100\ ns; 14800\ ns]$ erstreckt. Die Mitte dieser Verteilung ist leicht gegenüber der Mitte der He^{2+}-Verteilung verschoben, da die m/q-Werte nicht exakt übereinstimmen. Mit Hilfe des rot eingezeichneten Fits kann der Untergrund rekonstruiert werden. Im grau markierten Flugzeitbereich ($T_{Analyse} = [14250\ ns; 14550\ ns]$), der für die Analyse verwendet wurde, befinden sich etwa 433000 Ereignisse. Von diesen stammen schätzungsweise 126000 aus der Ionisation von Restagsteilchen, vornehmlich H_2^+. Somit beläuft sich der Anteil des Untergrunds in $T_{Analyse}$ auf etwa 30%.

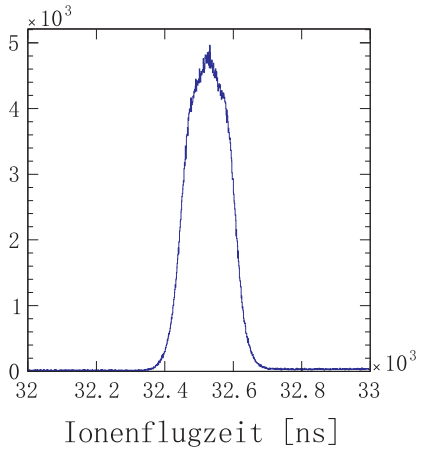


Abbildung 4.7.: Flugzeitverteilung für Ionen mit $m/q = 10$ bei der Neonmessung mit Schnitt auf die Ortskoordinaten des Jetflecks.

Mit einem einfachen Verfahren kann vor allem der vermehrt auftretende H_2^+-Untergrund in den in der Analyse erzeugten Spektren noch weiter effektiv reduziert werden. Da doppelt geladenes Helium und einfach geladener Wasserstoff aufgrund ihrer ungleichen Massen einen leicht unterschiedlichen m/q Wert besitzen, sind deren Flugzeiten im Spektrometer nicht exakt gleich. Außerdem weist warmer Wasserstoff eine breitere Flugzeitverteilung auf als Heliumionen aus dem kalten Gasstrahl. Wie Abb. 4.6 (B) zeigt, kann so ein Flugzeitbereich gefunden werden, der fast ausschließlich durch H_2 verursacht wird (gelb markiert). In einer separaten Analyse werden diese Ereignisse exakt so behandelt wie die Ionen aus dem grau markierten Bereich. So erhält man jedes Spektrum erneut, jedoch mit H_2^+-Untergrund

gefüllt. Diese Ereignisse werden anschließend entsprechend gewichtet von den für He^{2+} erstellten Spektren abgezogen.
Der Untergrund für doppelt geladene Neonatome ist deutlich geringer, wie in Abb. 4.7 dargestellt. Von insgesamt etwa 750000 Ereignissen im Flugzeitfenster $[32350; 32700]$ gehören nur schätzungsweise 10000 Ereignisse nicht zu doppelt geladenem Neon. Dieser Untergrund ist daher vernachlässigbar.

4.5.2. Elektronenauswahl

Die Messrate des Elektronendetektors war etwa um einen Faktor von 3 größer als die des Ionendetektors. Zu einem detektierten He^{2+}-Ion wurden also häufig drei oder mehr Elektronen gemessen. Durch die sehr gute Impulsauflösung der Ionen in allen drei Raumrichtungen stehen für die Auswahl der Elektronen zwei Möglichkeiten zur Verfügung: (a) aus den gemessenen Elektronen die zwei richtigen auswählen und (b) mit einem Elektron und dem Ion die Impulskomponenten des zweiten Elektrons berechnen. Betrachtet wird zunächst Fall (a).
Der 30%-Untergrund der Ionen kann durch eine starke Bedingung auf den Summenimpuls ($p_{Sum} \approx 0$) der drei beteiligten Teilchen effektiv verringert werden. H_2^+-Ionen, das zugehörige Elektron und ein weiteres, zufällig während des gleichen Laserpulses erzeugtes erfüllen diese Bedingung in allen drei Raumrichtungen nur in den seltensten Fällen und werden somit aussortiert. Die vollständige Auswahl der Ereignisse beinhaltet für den Fall zweier gemessener Elektronen daher folgende Bedingungen:

(B1) Flugzeit des Ions.

(B2) Auftreffort des Ions auf dem Detektor.

(B3) Summenimpuls von Ion und beiden Elektronen $p_{Sum} \approx 0$ in allen drei Raumrichtungen.

Diese Bedingungen erfüllen noch etwa 61000 Ereignisse. Wird eine 50%ige Detektionswahrscheinlichkeit für ein Elektron angenommen, müssten etwa 25% der echten He^{2+}-Ereignisse diese Bedingungen erfüllen. Mit rund 20% ist dieser Wert also im vorliegenden Fall durchaus realistisch.
Im Fall (b) kann (B3) nicht angewendet werden, da nur zwei der drei Teilchen gemessen werden und das dritte durch die Berechnung inhärent die Impulserhaltung erfüllt, auch wenn das Ion kein He^{2+} war. Der Untergrund fällt hier also deutlich stärker ins Gewicht. Außerdem ist nicht einmal klar, dass das eine gewählte Elektron wirklich zum Helium-Ion gehört. Und auch die Impulsauflösung des berechneten Elektrons ist durch Fehlerfortpflanzung der Impulsauflösungen des Ions und des ersten Elektrons schlechter als in (a). Auf der anderen Seite können im Vergleich zu (a) aber auch die Ereignisse miteinbezogen werden, bei welchen ein Elektron nicht nachgewiesen wurde. Insbesondere gilt das für jene Ereignisse, bei denen beide Elektronen sehr ähnliche Startimpulse haben und das zuletzt ankommende aufgrund der Totzeit des Detektors nicht nachgewiesen werden kann. Somit

werden statt 25% (a) nun 75% (b) der He^{2+} Ereignisse genutzt. Für die physikalische Interpretation werden beide Varianten wichtig sein.

4.5.3. Effektive Impulsauflösung

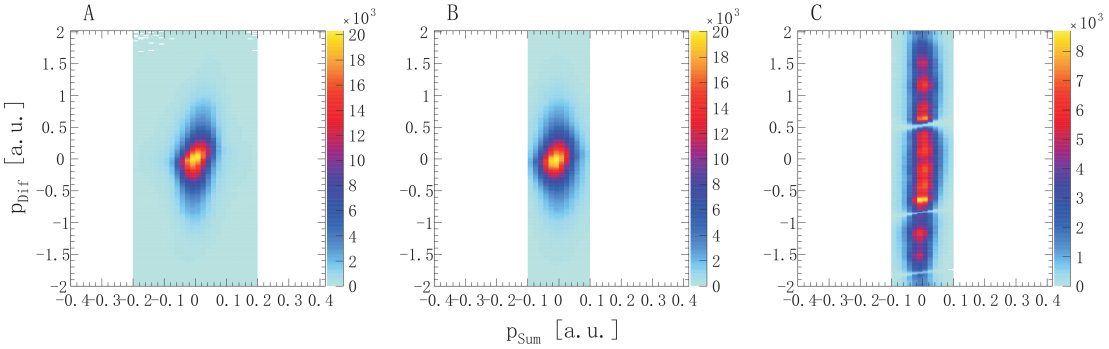


Abbildung 4.8.: Impulserhaltung in der Einfachionisation. Von links nach rechts: x-, y- und z-Komponenten der Impulse. Abszissen: Impulssumme von Ion und Elektron. Ordinaten: Impulsdifferenz zwischen Ion und Elektron.

Die Impulsauflösung der COLTRIMS-Apparatur setzt sich in komplizierter Weise aus der Impulsbreite des Jets, der Aufweitung der Impulsverteilung durch das Spektrometer und der Orts- bzw. Zeitauflösung der Detektoren zusammen. Glücklicherweise liefert uns die Breite des Summenimpulses direkte Informationen über die effektive Auflösung.

Raumrichtung	x	y	z
Summenimpulsauflösung Einfachionisation [a.u.]	0,09	0,09	0,07
Summenimpulsauflösung Doppelionisation [a.u.]	0,16	0,16	0,13

Tabelle 4.1.: Auflösungen der gemessenen Impulse in der Einfach- und Doppelionisation von Helium bei der niedrigsten Intensität (I1) $3 \cdot 10^{14} W/cm^2$ aufgeschlüsselt nach Impulskomponente.

Aus den Darstellungen in Abb. 4.8 und den entsprechenden Histogrammen für Doppelionisationsereignisse können die Halbwertsbreiten der Projektionen auf die Abszisse bestimmt werden, welche in Tabelle 4.1 angegeben sind. Die Impulsauflösung der Elektronen kann gegenüber der der Ionen vernachlässigt werden. Letztere ist in den Ortsrichtungen x, y proportional zu $\sqrt{q}$ und in Flugzeitrichtung z proportional zu q, was auch etwa den Beobachtungen entspricht.

5. Doppelionisation mit 400 nm-Laserpulsen

Dieses Kapitel stellt den Hauptteil der vorliegenden Arbeit dar und beinhaltet die physikalische Interpretation der Daten. Der Fokus liegt dabei auf den Heliummessungen mit verschiedenen Laserintensitäten, da He das denkbar einfachste System für Doppelionisation darstellt, welches grundlegend untersucht wird. Darauf aufbauend wird anschließend die Doppelionisation am komplexeren Neonatom behandelt.

5.1. Untersuchungen an Helium

Die hier betrachteten Messungen sind in verschiedenen Zeiträumen und unter leicht abweichenden Bedingungen durchgeführt worden. Die erste Messreihe (M1) mit den Intensitäten (I2) $4 \cdot 10^{14} W/cm^2$ und (I3) $5 \cdot 10^{14} W/cm^2$ wies aus ungeklärten Gründen[1] eine deutlich schlechtere Impulsauflösung auf als die in Tabelle 4.1 berichteten Werte. Vielmehr zeigten sich die in Tabelle 5.1 aufgelisteten Halbwertsbreiten.

Raumrichtung	x	y	z
Summenimpulsauflösung [a.u.]	0,25	0,38	0,17

Tabelle 5.1.: Auflösungen der gemessenen Impulssummen aus der Doppelionisation von Helium bei der ersten Messreihe mit den Intensitäten (I2) $4 \cdot 10^{14} W/cm^2$ und (I3) $5 \cdot 10^{14} W/cm^2$, aufgeschlüsselt nach Impulskomponente.

Eine kurze Testmessung während (M1) ließ auf eine bessere Sichtbarkeit der gesuchten Effekte bei niedrigeren Intensitäten schließen, weshalb in einer zweiten Messreihe (M2) die Doppelionisation bei der niedrigsten Intensität (I1) $3 \cdot 10^{14} W/cm^2$ vermessen wurde. Die mangelnde Stabilität des Lasers und der starke Abfall der He^{2+}-Rate im betrachteten Intensitätsintervall ließen eine Messung bei noch niedrigerer Intensität nicht zu.
In der letzten Reihe (M3) sind die Messungen zum He^{2+}/He^{+}-Verhältnis entstanden. Für jede der Reihen wurde eine separate Intensitätskalibrierung durchgeführt, wodurch nicht nur die absoluten, sondern auch die relativen Werte mit einem Fehler besetzt sind.

[1] In Messreihe (M1) wurde ein elektrisches Feld von 2 V/cm verwendet, in (M2) $1,5$ V/cm. Das allein erklärt die schlechtere Auflösung jedoch nicht.

5.1.1. Kalibrierungen

Intensität

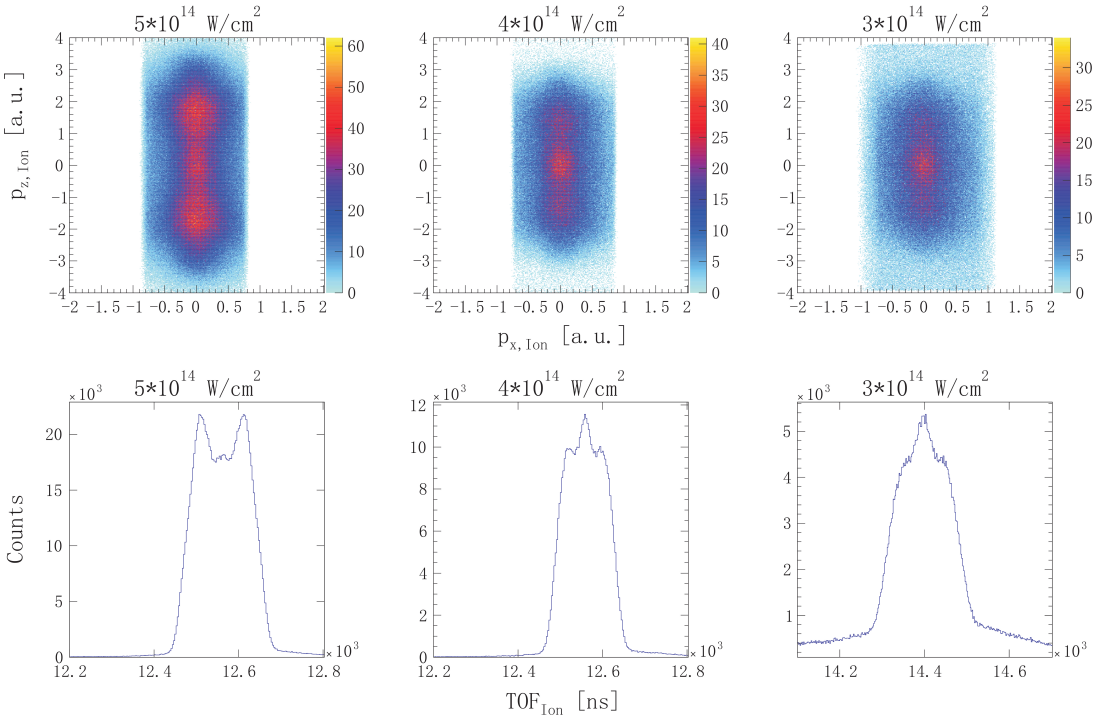


Abbildung 5.1.: Obere Reihe: Gemessene He^{2+}-Ionenimpulsverteilungen in der $x-z$-Ebene für verschiedene Intensitäten. Von links nach rechts: (I3), (I2) und (I1). (I2) und (I3) stammen aus Messreihe (M1), (I1) aus (M2). Untere Reihe: Flugzeitverteilungen der He^{2+}-Ionen.

Essentiell für den Vergleich verschiedener Messungen miteinander und mit theoretischen Rechnungen ist eine genaue Angabe der verwendeten Laserintensität. Im Rahmen dieser Arbeit wurden dazu Kalibrierungen mit Wasserstoff und Xenon verwendet. Hierbei betrachtet man im ersten Fall die Reaktion $H_2 + h\nu \rightarrow H^+ + H + e$ und bestimmt die freiwerdende Gesamtenergie des Aufbruchs mit $E_{Ges} = E_{H^+} + E_H + E_e$. Allerdings können nur geladene Teilchen mit der COLTRIMS-Apparatur nachgewiesen werden, weshalb die für den Aufbruch geltende Beziehung $E_{H^+} = E_H$ genutzt werden muss, um die Energie des neutralen Wasserstoffatoms zu bestimmen. Die Gesamtenergie hängt durch die Verschiebung der elektronischen Kontinuumszustände um U_p auch von der Laserintensität ab (siehe Kap. 2.2.2). Dadurch kann anhand der Verschiebung der Gesamtenergie und mit Gleichung 2.13 die Intensität bestimmt werden.
Ähnliches gilt für die Kalibrierung mit Xenon: Die Maxima in den Energiespektren der ionisierten Elektronen verschieben sich intensitätsabhängig, wodurch mit der Messung bei

verschiedenen Intensitäten wieder auf U_p geschlossen werden kann.
Hinweis: Durch die Messung mit verschiedenen Intensitäten wird ΔU_p bestimmt. Da U_p aber linear mit der Intensität skaliert, reichen die daraus bestimmte Steigung und der Ursprung ($P = 0|I = 0$) als ein Punkt der Kalibrierungsgeraden aus, um gemessene Laserleistungen (P) in Intensitäten (I) zu übersetzen.
Die bestimmten Absolutwerte der Intensität sind fehlerbehaftet und Konsistenztests daher sinnvoll. Aus diesem Grund werden die verschiedenen Intensitätskalibrierungen der drei Messreihen anschließend mit Hilfe anderer Kriterien zueinander in Relation gebracht und überprüft. Zum einen gibt der Wert He^{2+}-*Ionen pro Zeit* einen groben Hinweis auf die verwendete Intensität[2]. Der physikalisch stärkste Anhaltspunkt ist jedoch die Impulsverteilung der Ionen in Flugzeitrichtung. Im betrachteten Intensitätsregime hängt deren Struktur stark von der Intensität ab (siehe Abb. 5.1): Offensichtlich liegt im betrachteten Intensitätsintervall der Übergang von bevorzugter Emission der Elektronen in entgegengesetzte Richtung[3] (bei niedrigen Intensitäten) zu einer Emission in die gleiche Richtung (höhere Intensitäten). Dies drückt sich in der Impulsverteilung der Ionen durch den Übergang von einer Einmaximum- (bei $p_z = 0$) zu einer Zweimaximastruktur (bei $p_z = \pm p_{Peak}$) aus. Im Übergangsbereich ist eine Überlagerung dieser Verteilungen in Form dreier Maxima zu sehen, wobei die Amplituden der beiden äußeren im Vergleich zum mittleren stark von der Intensität abhängen. Mit diesem Wissen können direkt während der Messung Flugzeitverteilungen analysiert und mit bereits gemessenen Intensitäten verglichen werden.
Ein weiterer robuster Test, der direkt an den gemessenen Daten und ohne Kalibrierung durchgeführt werden kann, ist die Betrachtung eines abrupten Abfalls in der Impulsverteilung der Elektronen aus Einfachionisationsereignissen. Durch Tunnelionisation - den dominanten Ionisationsmechanismus bei den verwendeten Intensitäten - können Elektronenenergien von maximal $E = 2U_p$ (in a.u., siehe Kap. 2.3.1) erreicht werden. Der Wert des Impulses, bei welchem der Abfall beobachtet wird, gibt somit direkt Aufschluss über die verwendete Intensität (siehe Abb. 5.6 unten).

Bezeichnung	Intensität $[W/cm^2]$	U_p [eV]	$\gamma(He \rightarrow He^+)$	$\gamma(He^+ \rightarrow He^{2+})$
(I1)	$3 \cdot 10^{14}$	$4,5$	1,65	2,46
(I2)	$4 \cdot 10^{14}$	6	1,43	2,13
(I3)	$5 \cdot 10^{14}$	8	1,24	1,85

Tabelle 5.2.: Ponderomotorisches Potential und Keldysh-Parameter für beide Ionisationsschritte bei den verwendeten Intensitäten.

Mit Hilfe dieser Tests kann der Fehler der Intensitätskalibrierung auf unter 20% geschätzt

[2]Im Normalfall vergleicht man das He^{2+}/He^+-Verhältnis. Durch die Verwendung von Kollimatoren ohne Rückmeldemechanismus ist das jedoch nicht mehr bestimmbar, da die He^+-Rate in unbekanntem Maße verringert wird.

[3]Hierbei ist die z-Impulskomponente gemeint, da die Impulsvektoren des Großteils der Ereignisse in diese Richtung orientiert sind.

werden. Um keine höhere Genauigkeit vorzutäuschen, sind die angegebenen Intensitäten daher auf $1 \cdot 10^{14} W/cm^2$ gerundet.
Die Kenntnis der Intensität erlaubt die Bestimmung der in Tabelle 5.2 aufgeführten Keldysh-Parameter (siehe Kap. 2.2.4) für beide Ionisationsschritte. Diese deuten für alle betrachteten Intensitäten bei beiden Ionisationsschritten auf Ionisation im nichtadiabatischen Tunnelbereich hin.

Photonenenergie

Neben der Intensität muss auch die exakte Photonenenergie bestimmt werden. Zu diesem Zweck wurden direkt vor den eigentlichen Messungen die Wellenlängenspektren der zweiten Harmonischen aufgenommen. Eines dieser Spektren ist beispielhaft für (I1) in Abb. 5.2 zu sehen.

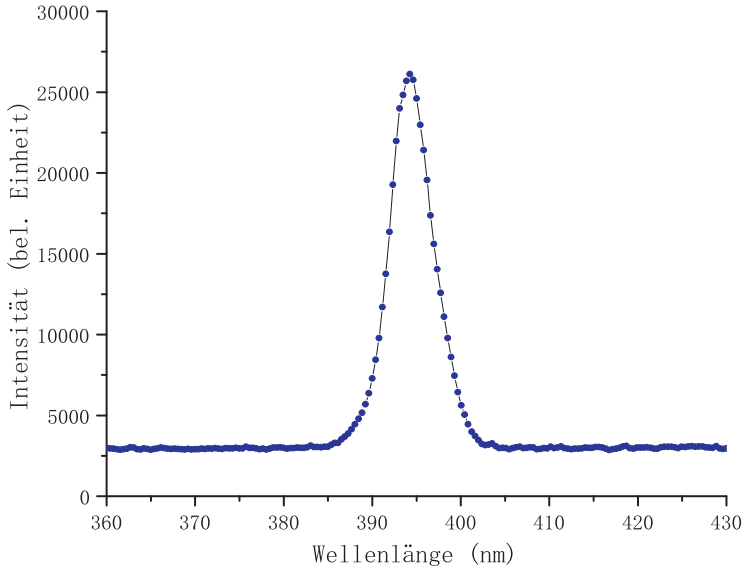


Abbildung 5.2.: Spektrum der zweiten Harmonischen vor der Heliummessung bei der Laserintensität (I1).

Mit der Näherung einer Gauß-Funktion ergibt sich eine zentrale Wellenlänge von etwa $\lambda_{zentral} = 394,5\ nm$ mit $\sigma = 2,5\ nm$. Innerhalb einer 1σ-Umgebung um die zentrale Wellenlänge beträgt die Photonenenergie somit zwischen $3,12\ eV$ und $3,16\ eV$.

5.1.2. He^{2+}/He^{+}-Verhältnis

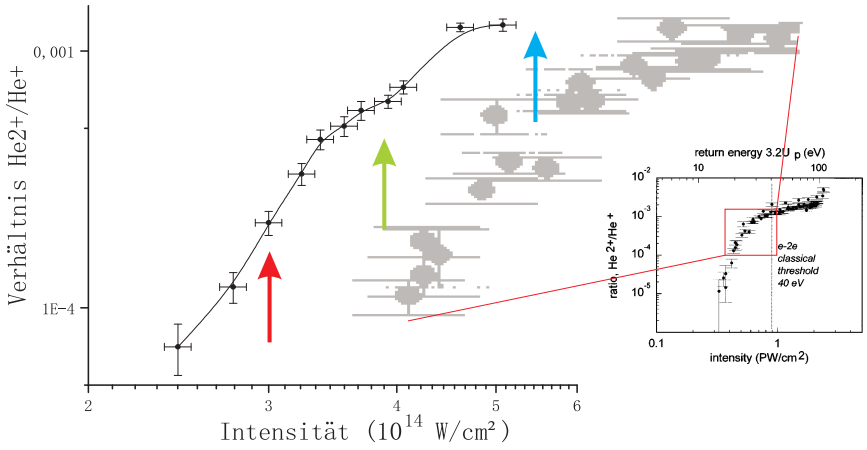


Abbildung 5.3.: Kleine schwarze Punkte: Das intensitätsabhängige He^{2+}/He^{+}-Verhältnis, gemessen bei 400 nm. Die Präzisionsmessungen fanden bei Intensitäten von (rot) $3 \cdot 10^{14}$ W/cm^2 (I1), (grün) $4 \cdot 10^{14}$ W/cm^2 (I2) und (blau) $5 \cdot 10^{14}$ W/cm^2 (I3) statt. Die hier markierten Intensitäten sind die exakt berechneten, die mit einem Fehler von etwa 20% behaftet sind. Deren relative Abstände sind jedoch wesentlich genauer bestimmt. Große graue Punkte: Vergrößerung eines Teils der experimentellen Daten von Sheehy et al. (SLW^{+}98) aus dem Jahre 1998, die unten rechts im Original gezeigt sind.

Einen Hinweis auf das betrachtete Regime der Doppelionisation (nichtsequentiell oder sequentiell) liefert üblicherweise das Verhältnis He^{2+}/He^{+} in Abhängigkeit von der Intensität. In der gängigen Literatur wurde NSDI über eine charakteristische Struktur identifiziert, die einem Plateau in einem bestimmten Intensitätsintervall entspricht. In Abb. 5.3 ist diese Struktur ebenfalls zwischen $3,3 - 4 \cdot 10^{14}$ W/cm^2 erkennbar[4]. Zu beachten ist, dass die absoluten Werte des He^{2+}/He^{+}-Verhältnisses mit theoretischen Rechnungen und anderen Messungen nicht exakt vergleichbar sind, da in der vorliegenden Arbeit Kollimatoren (siehe Kap. 3.3.3) verwendet wurden, die signifikant die He^{+}-Rate verringern. Dennoch sind zum Vergleich experimentelle Daten von Sheehy et al. (SLW^{+}98) in großen grauen Punkten eingezeichnet. Diese zeigen den gleichen Verlauf, jedoch bei etwas höheren Intensitäten bzw. etwas kleinere Werte des Verhältnisses He^{2+}/He^{+}. Allerdings kann das auf den Fehler der Intensitätskalibration zurückgeführt werden, welcher im vorliegenden Fall $\approx 20\%$ beträgt und in Referenz (SLW^{+}98) mit $\approx 25\%$ angegeben wird.

[4]Die Konversionseffizienz des BBOs und die maximale Leistung des Lasers bei der Wellenlänge 800 nm führen zu einer maximal erreichbaren Intensität der 400 nm-Pulse von etwa $7 \cdot 10^{14} W/cm^2$.

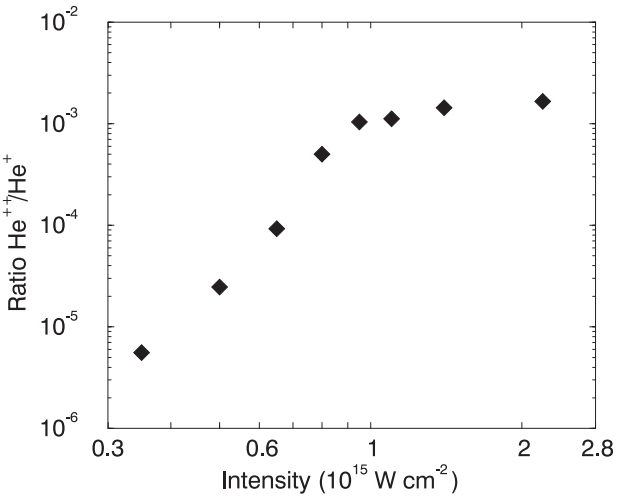


Abbildung 5.4.: Ergebnisse von TDSE-Rechnungen (PMDT00): das intensitätsabhängige Verhältnis von doppelt- zu einfachionisiertem Helium nach Ionisation durch 400 *nm*-Laserpulse.

TDSE(„**T**ime **D**ependent **S**chrödinger **E**quation“)-Rechnungen aus Ref. (PMDT00) (Abb. 5.4) weisen jedoch eine unerwartet große Diskrepanz sowohl zu den in dieser Arbeit gemessenen Daten als auch zu den experimentellen Daten von Sheehy et al. auf. Der Verlauf ähnelt zwar erneut den beiden gemessenen, allerdings ist dieser in der Theorie zu deutlich höheren Intensitäten verschoben.
Der mit den Daten der vorliegenden Arbeit erstellte Verlauf des Verhältnisses ist trotz der Verwendung von Kollimatoren aussagekräftig, da für alle Messpunkte die gleichen Kollimatoreinstellungen verwendet wurden. Die Form dieses Verlaufs lässt zunächst darauf schließen, dass es sich um jene Struktur handelt, welche den Übergang von NSDI zu SDI kennzeichnet. Wie ausführlich in Kap. 2.3.1 besprochen, liegen die minimal benötigten Intensitäten der NSDI Mechanismen deutlich über den hier gemessenen. Von den etablierten kommt energetisch nur Doppelionisation über einen doppelt angeregten Zwischenzustand in Frage. Daher muss davon ausgegangen werden, dass das beobachtete Plateau nicht den üblichen Übergang von NSDI zu SDI anzeigt, sondern vielmehr einen spezifischen Doppelionisationsprozess, der in diesem Intensitätsbereich dominant ist. Um weitergehende Aussagen zu tätigen, müssen jedoch zusätzliche Observable analysiert werden.

5.1.3. Einfachionisation

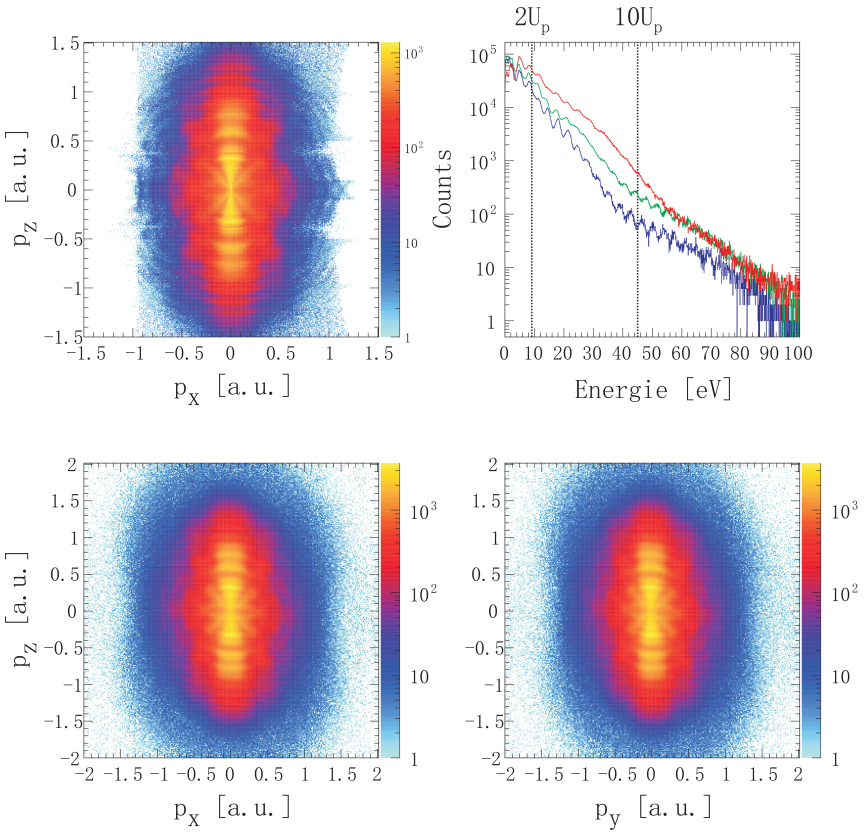


Abbildung 5.5.: Spektren zur Einfachionisation aus der Messung bei niedrigster Laserintensität $I = 3 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$. Oben Links: Logarithmische Darstellung des Elektronenimpulsspektrums aus Abb. 4.5. Die konzentrischen Kreise sind ATI-Maxima im Impulsraum. Oben rechts: Logarithmisches Energiespektrum der Elektronen, in dem die ATI-Maxima auch bis zu hohen Energien gut erkennbar sind. Die Ordinate und die gestrichelten Linien gelten für die blaue Kurve ($I = 3 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$). Zum Vergleich sind die Energieverteilungen der beiden anderen Intensitäten $I = 4 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ (grün) und $I = 5 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ (rot) auch eingetragen. Unten sind die Ionenimpulsverteilungen in der $x - z$- (links) sowie $y - z$-Ebene (rechts) dargestellt.

Bevor die Doppelionisation betrachtet wird, lohnt ein Blick auf die Einfachionisation, um sich einige grundlegende Eigenarten der Messung klarzumachen. Im Folgenden wird der Fokus zumeist auf die Daten der Messung bei der niedrigsten Intensität (I1) $3 \cdot 10^{14} W/cm^2$ gelegt, da diese die wichtigsten Effekte am deutlichsten zeigen und die beste Impulsauflösung aufweisen. An einigen Stellen wird aber auch ein Vergleich mit den bei anderen Intensitäten

gewonnenen Daten wichtig.
In Abb. 4.5 war bereits die Elektronenimpulsverteilung der Einfachionisation in der $x-z$-Ebene zu sehen. Aufgrund der linearen Polarisation und der damit verbundenen Beschleunigung der Ladungen durch das elektrische Feld des Lasers in diese Richtung sind die Impulse vornehmlich in Laserpolarisationsrichtung (z) ausgerichtet.
Abb. 5.5 (oben links) zeigt das Spektrum aus Abb. 4.5 logarithmisch, um die Strukturen besser sichtbar zu machen. Die konzentrischen Ringe repräsentieren die ATI-Maxima im Impulsraum. Außerdem ist bis etwa $0,8/0,9$ $a.u.$ eine kontinuierliche Verteilung zu erkennen, die auf adiabatische Tunnelionisation (Kap. 2.2.4) zurückzuführen ist. Wird diese Impulsverteilung auf die Ordinate projiziert, ergeben sich die in Abb. 5.6 gezeigten Histogramme der unteren Reihe. Diese weisen einen abrupten Abfall auf, welcher jeweils mit einem schwarzen Pfeil markiert ist. Hiermit kann, wie in Abschnitt 5.1.1 erläutert, auf die Peakintensität des Lasers zurückgeschlossen werden.
In Abb. 5.5 ist außerdem oben rechts das Energiespektrum der Elektronen aus Einfachionisation dargestellt. Selbst bei hohen Energien können ATI-Maxima mit etwa 3 eV Abstand zueinander ausgemacht werden. Durch adiabatische Tunnelionisation sind jedoch nur Elektronen bis etwa 9 eV erzeugbar. Alle höherenergetischen Elektronen müssen daher aus nichtadiabatischer Tunnelionisation, Rückstreuereignissen oder noch unbekannten Vorgängen stammen. Zudem sind die Energieverteilungen der beiden anderen Intensitäten $4{\cdot}10^{14}W/cm^2$ (I2, grün) sowie $5{\cdot}10^{14}W/cm^2$ (I3, rot) eingezeichnet. Bei kleinen Energien bis etwa 10 eV dominieren Freeman-Resonanzen, die intensitätsunabhängige Maxima an den gleichen Positionen verursachen. Lediglich die relativen Höhen der Maxima ändern sich mit der Intensität. Zu höheren Energien werden die klassischen ATI-Maxima dominant. Zu erkennen ist das an der relativen Verschiebung der Maxima bei den unterschiedlichen Intensitäten. Beispielsweise liegt bei der $10U_p$-Markierung für (I1) ein Minimum vor, für (I2) jedoch ein Maximum. Die in Tab. 5.2 angegebenen ponderomotorischen Potentiale unterscheiden sich um $1,5$ eV. Dies entspricht genau der beobachteten Verschiebung im Energiespektrum durch das entsprechend höhere effektive Ionisationspotential $I_{p,He+,eff}$ um eine halbe Photonenenergie.
Um die außergewöhnlich gute Impulsauflösung der Ionen zu belegen, sind in der unteren Reihe von Abb. 5.5 deren Impulsspektren in $x-z$- sowie $y-z$-Ebene dargestellt. Beide zeigen die gleiche Struktur wie die Verteilung des Elektrons, selbst in Jetrichtung y, die üblicherweise die schlechteste Auflösung aufweist[5].
Abb. 5.6 (oben) sind die Energiespektren aller Intensitäten für kleine Energien zu entnehmen, mit Impulsvektoren, die größtenteils in Polarisationsrichtung zeigen, um die Energieauflösung zu verbessern. Hier sind deutlich schmalere Maxima zu erkennen, deren Wirkungsquerschnitt mit höherer Energie abnimmt. Da die Positionen der Maxima scheinbar unabhängig von der Intensität sind und sich nur deren relative Amplituden ändern, können sie als Freeman-Resonanzen identifiziert werden (siehe Kap. 2.2.7). Zur Untermauerung

[5]Gut zu erkennen sind hier außerdem sogenannte Intracycle-Interferenzen, also Interferenzen von Wellenpaketen, die im gleichen Viertelzyklus des Laserfeldes erzeugt werden (Näheres dazu in der Dissertation von M. Richter (Ric16)).

dieser These sind mit schwarzen Strichen jeweils die Positionen der Maxima eingezeichnet, die entstehen würden, wenn Elektronen aus einem Rydbergzustand mit $n = 3, 4, 5, 6$ durch die Absorption eines, zweier oder dreier Photonen ionisiert werden (siehe Beschriftung oben rechts). Der Einfachheit halber wurden die Bindungsenergien des Elektrons im Wasserstoffatom verwendet, die im Falle von Rydbergzuständen (große n) näherungsweise den Heliumzuständen entsprechen. So kann fast jedes schmale Maximum einer Resonanz zugeordnet werden, abgesehen von den Maxima bei unter 1 eV sowie etwa $1,85$ eV für die beiden höchsten Intensitäten (I2) und (I3).

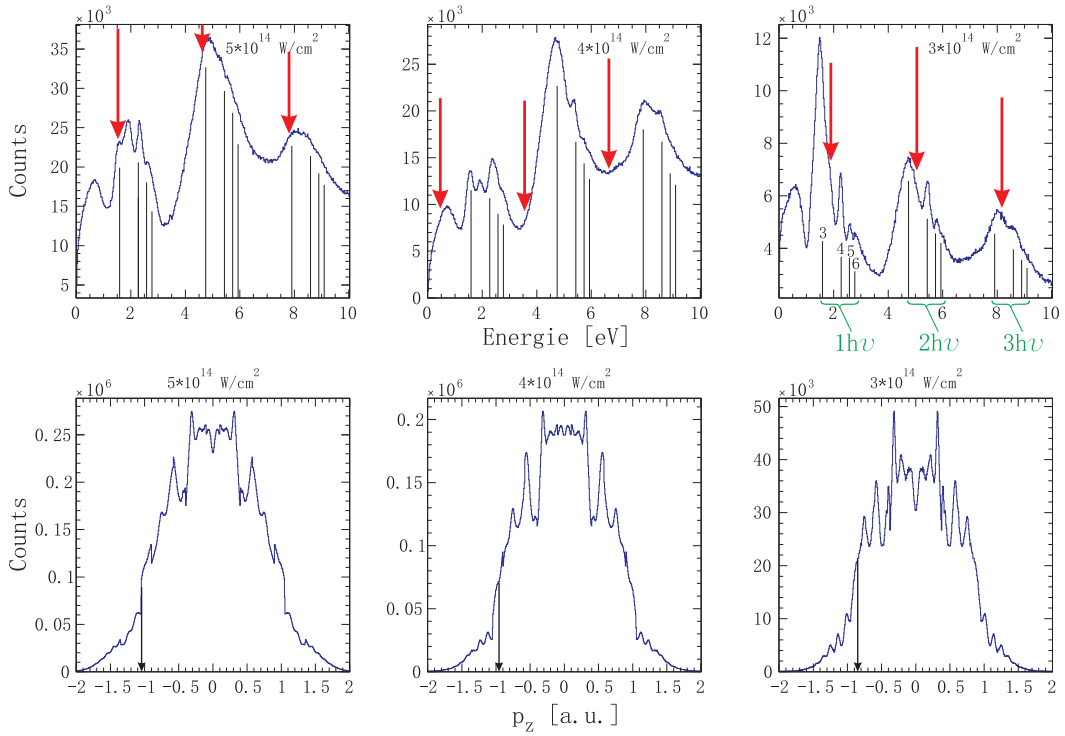


Abbildung 5.6.: Obere Reihe: Elektronenenergiespektren bis 10 eV für Elektronen mit Impulsvektoren, die größtenteils in Polarisationsrichtung zeigen. Die ATI-Maxima (berechnete Positionen sind mit roten Pfeilen markiert) spalten auf in schmalere Freeman-Resonanzen, deren Positionen im Energiespektrum sich nicht mit der Intensität verschieben. Mit schwarzen Strichen sind die Positionen der Energiemaxima eingezeichnet, die bei der Ionisation von Rydberg-Zuständen mit $n = 3, 4, 5, 6$ durch die Absorption von einem, zwei oder drei Photonen entstehen würden. Von links nach rechts: Intensitäten (I3), (I2) und (I1). Untere Reihe: z-Impulskomponenten der Elektronen nach Einfachionisation. Die Pfeile markieren den sichtbaren Abfall der Zählrate, der zur Intensitätsabschätzung verwendet wird.

Zur weiteren Bestätigung werden die nicht durch Freeman-Resonanzen beeinflussten Positionen der ATI-Maxima über das effektive Ionisationspotential von Helium berechnet:

$$I_{p,He^+,eff} = I_{p,He} + U_p \quad . \tag{5.1}$$

Die sich daraus ergebenden Positionen der ATI-Maxima sind für die jeweiligen Intensitäten in Abb. 5.6 oben mit roten Pfeilen gekennzeichnet. Offensichtlich haben alle sichtbaren Maxima ihren Ursprung in Freeman-Resonanzen, da die Positionen nahezu fest sind und sich nicht im erwarteten Maße intensitätsabhängig verschieben.

5.1.4. Doppelionisation

Die Hauptfragen dieser Arbeit lauten: Wie läuft Doppelionisation mit 400 nm-Laserpulsen bei niedrigen Intensitäten ab? Können Energiediskretisierung und die durch quantenmechanische Auswahlregeln auftretenden Nullstellen in der Zweiteilchenwellenfunktion der Elektronen beobachtet werden? Zur Beantwortung dieser Fragen stehen Energie- und Impulsverteilungen der Elektronen und Ionen zur Verfügung. Dank der COLTRIMS-Technologie besteht koinzidenter Zugriff auf alle Impulskomponenten der drei beteiligten Teilchen (ein He^{2+}-Ion und beide Elektronen). Wenn nicht anders erwähnt, sind in den folgenden Spektren jeweils die Impulse beider Elektronen gemessen worden. In einigen Fällen bietet es sich allerdings an, den Impuls eines Elektrons zu messen und den des zweiten mit Hilfe der Impulserhaltung aus dem Impuls des ersten und dem des Ions zu berechnen. Diese Fälle werden jeweils in den Bildunterschriften deutlich gemacht.

Impulse

Abb. 5.1 (rechts) zeigte bereits die Ionenimpulsverteilung für alle gemessenen Intensitäten. Daraus kann geschlossen werden, dass für (I3) bevorzugt „side-by-side“-Emission (SBS, beide Elektronen werden in den gleichen z-Halbraum emittiert) der Elektronen stattfindet, für (I1) und (I2) dagegen auch signifikant „back-to-back-Emission“ (B2B, die Elektronen werden nicht in den gleichen z-Halbraum emittiert) auftritt. Zudem waren in Abb. 5.6 im unteren Teil die z-Impulskomponenten der Elektronen nach Einfachionisation dargestellt, mit welchen U_p bestimmt werden kann. Um einen direkten Vergleich zwischen Einfach- und Doppelionisation zu ermöglichen, fasst Abb. 5.7 daher die wichtigsten Impulsverteilungen zusammen: Oben ist noch einmal die z-Komponente der Elektronen nach Einfachionisation dargestellt. Sie wird in Bezug gesetzt zur Verteilung nach Doppelionisation (Mitte). Bei etwa $p_z = 0,5\ a.u.$ sind vor allem in der mittleren Reihe (links und Mitte) klare Einschnitte zu erkennen. Diese resultieren daraus, dass bei Messreihe (M1) eine E-/B-Feld Kombination verwendet wurde, die kein vollständiges Auffüllen fehlender Impulsraumkomponenten zulässt. In der Einfachionisation (obere Reihe) existiert dieser Schnitt auch, fällt jedoch nicht so stark auf, da sich an dieser Position ein physikalisches Minimum der Verteilung befindet.

Schließlich zeigt der untere Teil die He^{2+}-Ionenimpulsverteilung in z-Richtung. Zu erkennen sind die deutlich größeren Breiten der Verteilungen für die Doppelionisation, welche aus der nichtsequentiellen Natur des Doppelionisationsprozesses resultieren. Außerdem können die Impulsverteilungen der Doppelionisation nicht mit zwei sequentiellen Tunnelionisationen erklärt werden, da die Energie der Elektronen nicht $2U_p$ und die der Ionen nicht $4U_p$ übersteigen dürften (siehe eingezeichnete schwarze Pfeile).

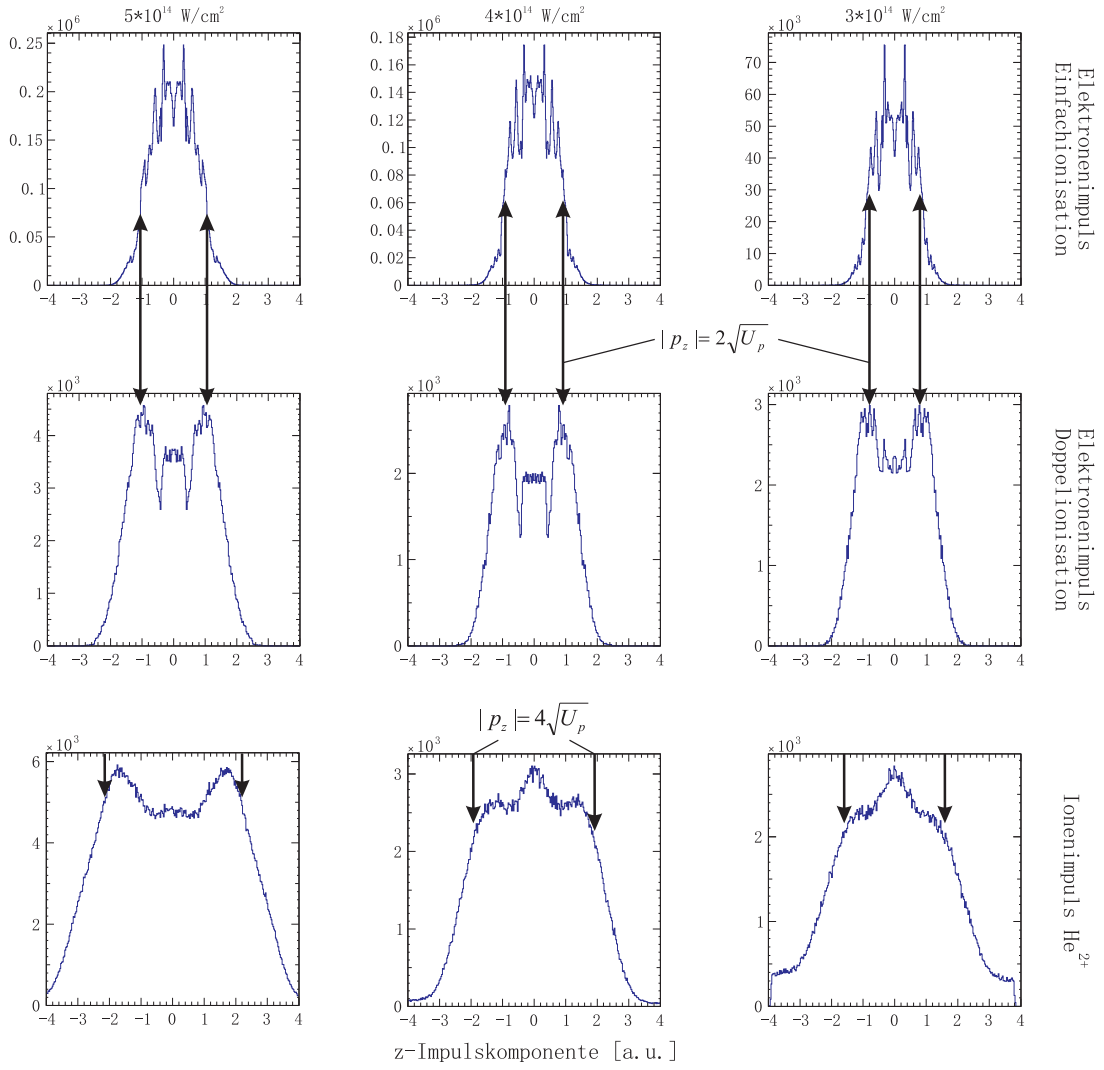


Abbildung 5.7.: Vergleich der z-Impulskomponenten nach Doppel- und Einfachionisation bei verschiedenen Intensitäten: Elektronenimpulsspektren nach Einfachionisation (obere Reihe) sowie Doppelionisation (mittelere Reihe) und Ionenimpulsspektren nach Doppelionisation (untere Reihe).

Um zu untermauern, dass mit sinkender Intensität vermehrt B2B-Emission auftritt, wer-

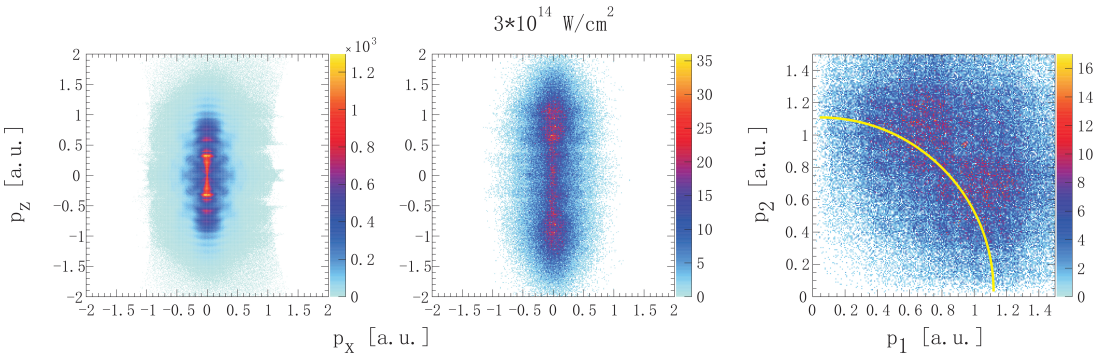


Abbildung 5.8.: Impulsverteilungen bei niedrigster Intensität (I1). Elektronenimpulsverteilung aus Einfachionisation (links) und Doppelionisation (Mitte) in der $x-z$-Ebene. Rechts: Korrelierte Impulsverteilung beider Elektronen aus Doppelionisation. Der gelbe Kreisabschnitt kennzeichnet eine konstante Summenenergie der beiden Teilchen.

den die Impulse der Elektronen aus Doppelionisation betrachtet. Zunächst ist dazu in Abb. 5.8 (Mitte) deren Impulsverteilung in der $y-z$-Ebene zu sehen. Mit genauem Blick können hier schon leichte Kreisabschnitte wie in der Einfachionisation (gleiche Abbildung links) ausgemacht werden. Die Stufen bei etwa $-0,4$ *a.u.* und $0,4$ *a.u.* sind wegen des Auffüllens der fehlenden Impulse (Abschnitt 4.4.1) nicht vermeidbar und stellen keine physikalischen Effekte dar. Zusätzlich zeigt Abb. 5.8 (rechts) die Korrelation der Impulsverteilungen beider Elektronen. Diese weist Maxima auf, die sich jeweils auf konzentrischen Kreisen befinden und damit konstante Energie repräsentieren. Die kachelartigen Intensitätsabfälle beispielsweise bei etwa $0,9$ *a.u.* sind nicht physikalischer Natur, sondern Artefakte der Messmethode: Ein Knoten im Flugzeit-Ort-Spektrum (Abb. 4.3) führt zu Minima im Impulsraum - wie in Abb. 4.5 zu sehen. Diese Minima sorgen für den Verlust von Ereignissen bei Impulsbeträgen, die größer sind als die der Flugzeit des Knotens entsprechenden Impulse der z-Komponente, was hier sichtbar wird. Grundsätzlich - wenn nicht anders erwähnt - sind Spektren, in denen gleiche Observable beider Elektronen dargestellt sind, wegen ihrer Ununterscheidbarkeit[6] symmetrisiert dargestellt. Das bedeutet, dass ein Paar von *zuerst gemessenem* (p_1) und *zuletzt gemessenem* (p_2) Elektron sowohl als $(p_1;p_2)$ als auch als $(p_2;p_1)$ eingetragen wird, was zu einer Spiegelsymmetrie mit der Winkelhalbierenden als Spiegelachse führt. Die dadurch „zusätzlich“ generierten Ereignisse verbessern natürlich nicht die Statistik. Um unphysikalische halbe Ereignisse zu vermeiden, wurde jedoch auf eine Division durch 2 verzichtet.

Um eine Aussage über die Emissionscharakteristik der beiden Elektronen treffen zu können, wird Abb. 5.9 betrachtet. Zu sehen sind die Impulskomponenten der beiden Elek-

[6]Die Messung unterscheidet in *zuerst gemessenes* und *als zweites gemessenes* Elektron. Diese Unterscheidung hat physikalisch aber keine Bedeutung. Beide Elektronen können das *erste emittierte* oder *zweite emittierte* sein.

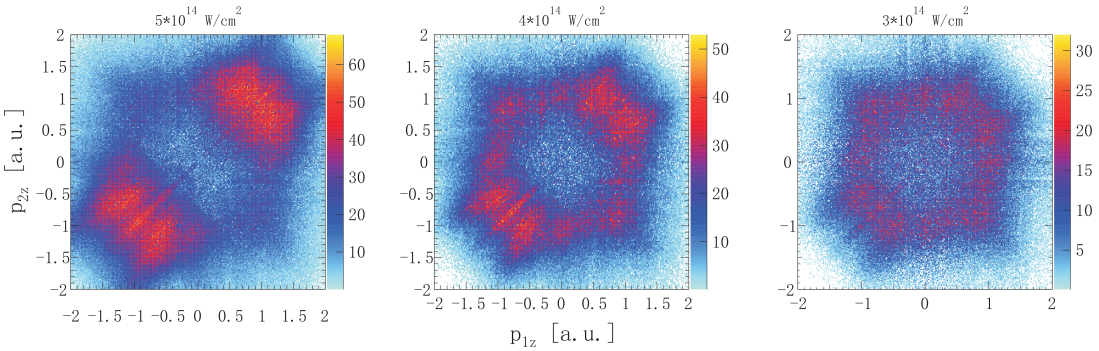


Abbildung 5.9.: Korrelierte Impulskomponenten in Laserpolarisationsrichtung (z) der beiden Elektronen aus Doppelionisation. Von links nach rechts: (I3), (I2) und (I1). Zur Erstellung dieser Spektren wurden die Impulskomponenten eines Elektrons berechnet. H_2^+-Untergrundreduzierung wurde angewendet.

tronen aus Doppelionisation in Polarisationsrichtung des Lasers (z). Hier sind ebenfalls leichte Stufen durch das Auffüllen der fehlenden Impulse zu erkennen, besonders in Teilen des Phasenraums mit wenig Zählrate. Beispielsweise resultieren daraus die scharfen Linien im mittleren Bild bei jeweils $-0,4$ $a.u.$. Die scharfen Maxima auf den Winkelhalbierenden sind ebenfalls Artefakte der Messmethode und haben keine physikalische Relevanz. Diese Strukturen sind bekannt aus früheren Messungen und ergeben sich aus einem kleinen Fehler in der Kalibrierung der Flugzeitverschiebung der Elektronen, der auch mit viel Aufwand nicht gänzlich behoben werden konnte.
Wie in Abb. 5.8 (links) gezeigt, ist z die Hauptemissionsrichtung der Elektronen. Dadurch lassen besonders viele Ereignisse im 1. und 3. Quadranten der Histogramme in Abb. 5.9 auf dominante SBS-, im 2. und 4. Quadranten hingegen auf dominante B2B-Emission schließen. Die Beobachtungen aus Abb. 5.1 werden also bestätigt: Für (I3) überwiegt SBS-Emission, für (I2) ist das deutlich schwächer der Fall und bei (I1) treten B2B- und SBS-Emission etwa gleich häufig auf. Das lässt auf eine Veränderung des dominanten Doppelionisationsmechanismus schließen. Zu erkennen ist außerdem, dass die Impulsbeträge für SBS-Emission mit steigender Intensität zunehmen, B2B-Anteile jedoch scheinbar konstante Impulsbeträge produzieren.

Gerade bei den beiden niedrigsten Intensitäten (Mitte und rechts) sind lokale Maxima um (0 $a.u.|\pm 1$ $a.u.$) bzw. (± 1 $a.u.|0$ $a.u.$) auszumachen. Diese Verteilung mit einem hochenergetischen und einem niederenergetischen Elektron ist laut (CLL10) charakteristisch für einen doppelt angeregten Zwischenzustand. Zumindest ein kleiner Teil der nichtsequentiellen Doppelionisation erfolgt somit vermutlich über diesen Pfad.
Der Vollständigkeit halber zeigt Abb. 5.10 die Summenimpulse aller Teilchen für jede Raumrichtung. Diese weisen aufgrund der kürzeren Flugzeit der doppelt geladenen Ionen im Spektrometer und deren daraus resultierenden schlechteren Impulsauflösung eine etwas größere Breite auf als die der Einfachionisation. Sie zeigen dennoch die äußerst gute

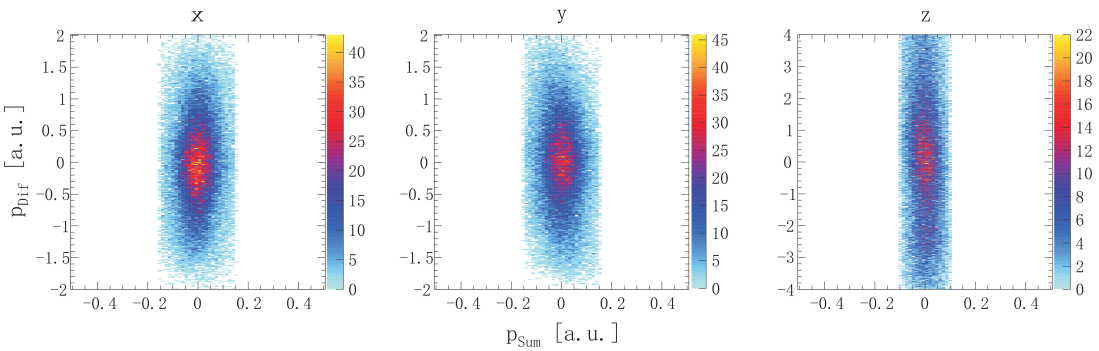


Abbildung 5.10.: Impulserhaltung in der Doppelionisation bei der Messung von (I1). Der Differenzimpuls ($p_{Ion} - p_{e1} - p_{e2}$) ist aufgetragen gegen den Summenimpuls aller Teilchen ($p_{Ion} + p_{e1} + p_{e2}$). Von links nach rechts: x-, y- und z-Komponente.

kombinierte Impulsauflösung des Spektrometers, der Detektoren und des Jets.

Energien

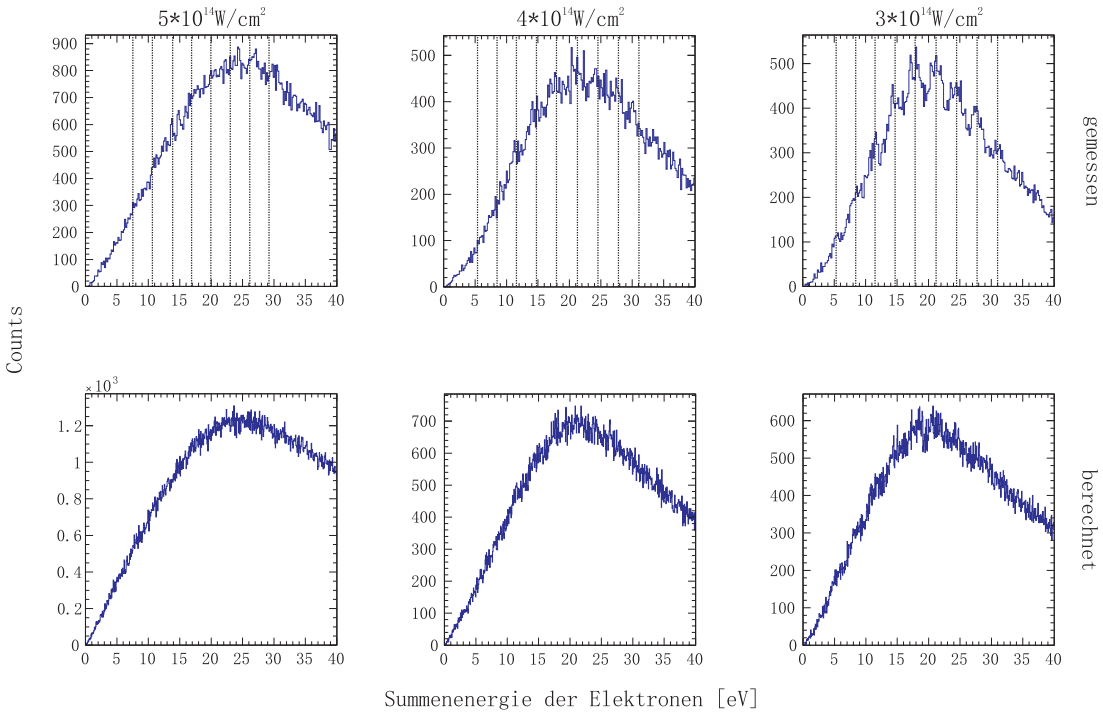


Abbildung 5.11.: Summenenergiespektren der Elektronen, gemessen bei den Intensitäten (I3) (links), (I2) (Mitte) und (I1) (rechts). Die oberen Spektren beinhalten jeweils die Energien zweier gemessener Elektronen. Bei den unteren wurde der Impuls eines Elektrons berechnet und somit seine Energie bestimmt. Zu beachten sind die unterschiedlichen Bin-Größen der Abszisse, wobei im unteren Fall ein feineres Binning verwendet wurde. Mit gestrichelten Linien sind die mit $E_{ATDI} = n \cdot E_{Photon} - I_{p,He} - I_{p,He+} - 2U_p$ berechneten Positionen der Summenenergiemaxima gekennzeichnet.

Wie schon im Fall von Argon im Zuge der Masterarbeit des Autors (Hen13) (HWT+13) beobachtet, soll auch für Helium die Energiequantisierung in der Summenenergie der Elektronen aus Doppelionisation nachgewiesen werden. Das ermöglicht ein „Zählen“ der absorbierten Photonen und lässt damit einen Blick auf die quantenmechanischen Auswahlregeln zu (siehe Kap. 2.3.5). In Abb. 5.11 sind dazu in der oberen Reihe die Summenenergiespektren der beiden an Doppelionisation beteiligten Elektronen für alle gemessenen Intensitäten gezeigt. Während für (I3) nur ein breites Maximum erkennbar ist, bilden sich bei (I2) leichte Strukturen aus, die bei der niedrigsten Intensität (I1) deutlich als ATDI-Maxima identifiziert werden können: Ihr Abstand beträgt jeweils genau eine Photonenenergie. Zum Vergleich sind im unteren Teil der Abbildung die gleichen Spektren der jeweiligen Messreihe noch einmal dargestellt. Allerdings wurde hierfür der Impulsvektor eines Elektrons über

die Impulserhaltung berechnet, was die Energieauflösung etwas verschlechtert. Dadurch werden die Maxima wesentlich breiter und sind zu trennen.

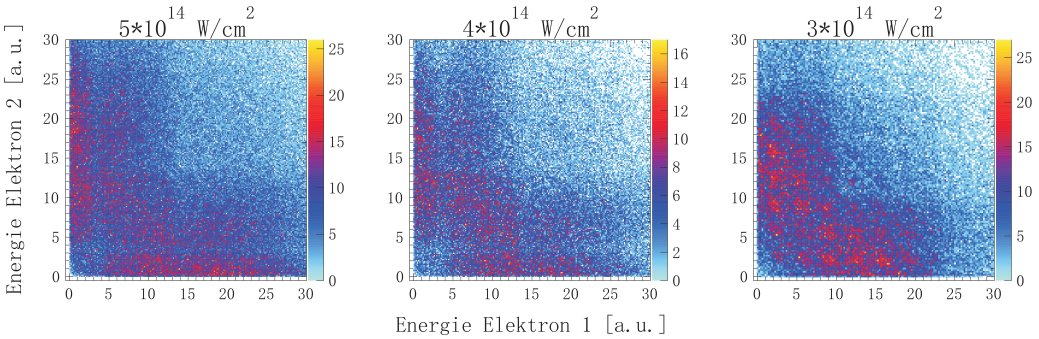


Abbildung 5.12.: Korrelierte Elektronenenergien nach Doppelionisation für Messungen bei verschiedenen Intensitäten. Von links nach rechts: (I3), (I2) und (I1).

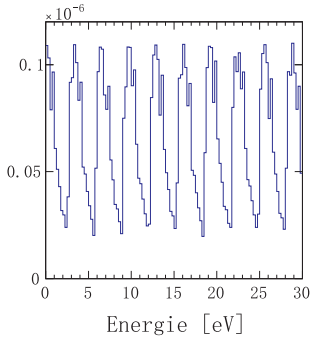


Abbildung 5.13.: Simuliertes Elektronensummenenergiespektrum mit Focal Averaging bei den im Experiment gegebenen Bedingungen: $I = 3 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$, $\lambda = 400\ nm$.

Beim Betrachten der korrelierten Elektronenenergien in Abb. 5.12 ist ein klarer Trend erkennbar: Mit sinkender Intensität von links nach rechts bildet sich eine Quantisierungsstruktur mit äquidistanten Maxima aus. Nicht nur die Summenenergie der Elektronen ist quantisiert, sondern offenbar sind es auch die Energien der einzelnen Elektronen. Bei (I1) können außerdem Energieerhaltungsdiagonalen ausgemacht werden (rechts). In diesem Fall liegt eine Überlagerung von (a) kontinuierlicher Energieaufteilung zwischen den Elektronen und (b) unabhängigen ATI-Strukturen[7] in den Energiespektren der beiden Elektronen vor[8].

[7] Ähnliches wurden im Rahmen der Masterarbeit des Autors im Fall von Argon beobachtet (HWT+13).
[8] Die zu den Achsen parallelen Geraden mit reduzierter Zählrate bei (I3) und (I2) haben ihren Ursprung

Diese Beobachtungen stimmen qualitativ mit den Ergebnissen neuester TDSE-Rechnungen für 800 nm-Pulse von Zielinski et al. (ZMS16) überein, die in Abb. 5.14 dargestellt sind und ebenfalls zusätzlich zu den erwarteten Energieerhaltungsdiagonalen ausgeprägte äquidistante Maxima zeigen, die jeweils einen Abstand von einer Photonenenergie aufweisen.

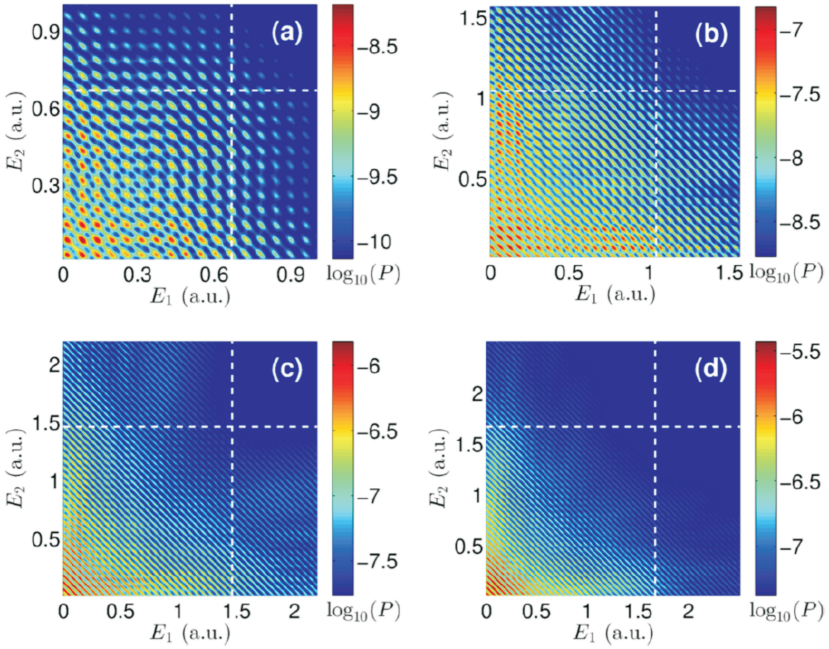


Abbildung 5.14.: Ergebnisse aktueller TDSE-Rechnungen (ZMS16): Korrelierte Elektronenenergien nach Doppelionisation von Helium mit 800 nm-Flattop[9]-Laserpulsen und Intensitäten von (a) $1,6 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$, (b) $2,5 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$, (c) $3,5 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ sowie (d) $4 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$.

Der Effekt, dass die ATDI-Maxima zu kleineren Intensitäten deutlich schärfer und schmaler werden, kann mehrere Ursachen haben. Zum einen wurde bei Experimenten mit 800 nm-Laserpulsen das Focal Averaging (Kap. 2.2.6) für fehlende ATDI-Maxima verantwortlich gemacht. Das kann durchaus auch in diesem Fall eine Rolle spielen, obwohl U_p für 400 nm-Pulse deutlich kleiner ist. U_p nimmt linear mit steigender Intensität zu und trägt im Summenenergiespektrum stärker bei als bei den Energien einzelner Elektronen, was konsistent mit den experimentellen Beobachtungen ist. Abb. 5.13 zeigt dazu eine Simulation mit den Parametern des Experiments bei niedrigster Intensität, in der die Summenenergiemaxima trotz Focal Averagings klar voneinander trennbar sein sollten.

in der bei dieser Messreihe abweichenden E-/B-Feld Kombination verglichen mit der Messung von (I1). Dadurch liegen die Magnetfeldknoten in der Flugzeitkomponente (siehe Kap. 4.4.1) nicht optimal und lassen sich nicht vollständig auffüllen.

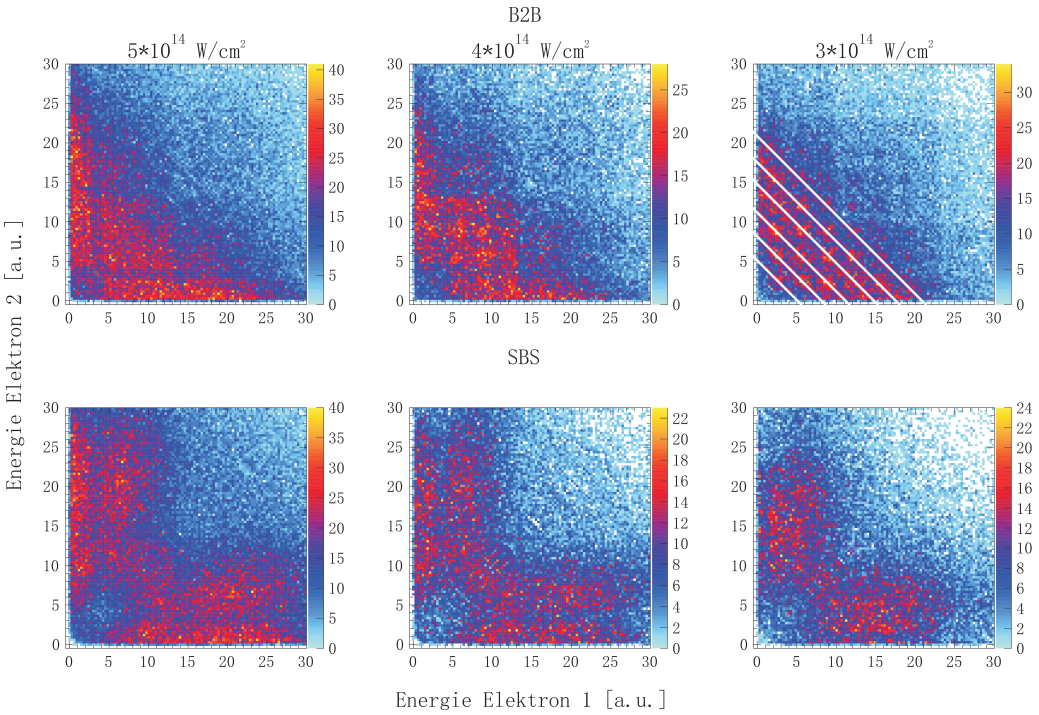


Abbildung 5.15.: Korrelierte Elektronenenergien nach Doppelionisation bei verschiedenen Intensitäten. Von links nach rechts: (I3), (I2) und (I1). Elektronen werden in Polarisationsrichtung back-to-back (obere Reihe) bzw. side-by-side (untere Reihe) emittiert. Oben rechts sind in weiß die berechneten ATDI-Energieerhaltungsdiagonalen eingezeichnet: $E_{ATDI} = nE_{Photon} - I_{p,He^{2+},eff}$ (mit der Anzahl absorbierter Photonen n und $I_{p,He^{2+},eff}$ aus Glg. 5.2).

Zum anderen besteht durchaus die Möglichkeit, dass verschiedene Doppelionisationsmechanismen vorliegen (wie schon in den Abschnitten zuvor vermutet), die eventuell die Sichtbarkeit der ATDI-Maxima bei höheren Intensitäten verringern.
Um die Frage zu beantworten, ob die intensitätsabhängige Sichtbarkeit damit zusammenhängt, dass die Emissionscharakteristik des Doppelionisationsmechanismus von SBS zu B2B wechselt, wird Abb. 5.15 betrachtet. Für die Histogramme der oberen Reihe wurden nur Elektronenpaare aus dem 2. und 4. Quadranten von Abb. 5.9 verwendet, entsprechend für die untere Reihe Paare aus dem 1. und 3.. Es zeigt sich, dass für SBS-Emission nur bei der niedrigsten Intensität eine diagonale Quantisierungsstruktur zu erkennen ist, jedoch bei keiner Intensität eine zu den Achsen parallele. Bei Elektronen hingegen, die B2B emittiert werden, bildet sich diese durch äquidistant positionierte Maxima charakterisierte Struktur sukzessive aus. Scheinbar ist daher nicht der Mechanismus der Doppelionisation verantwortlich für die Verbreiterung der Maxima, sondern tatsächlich das Focal Averaging.

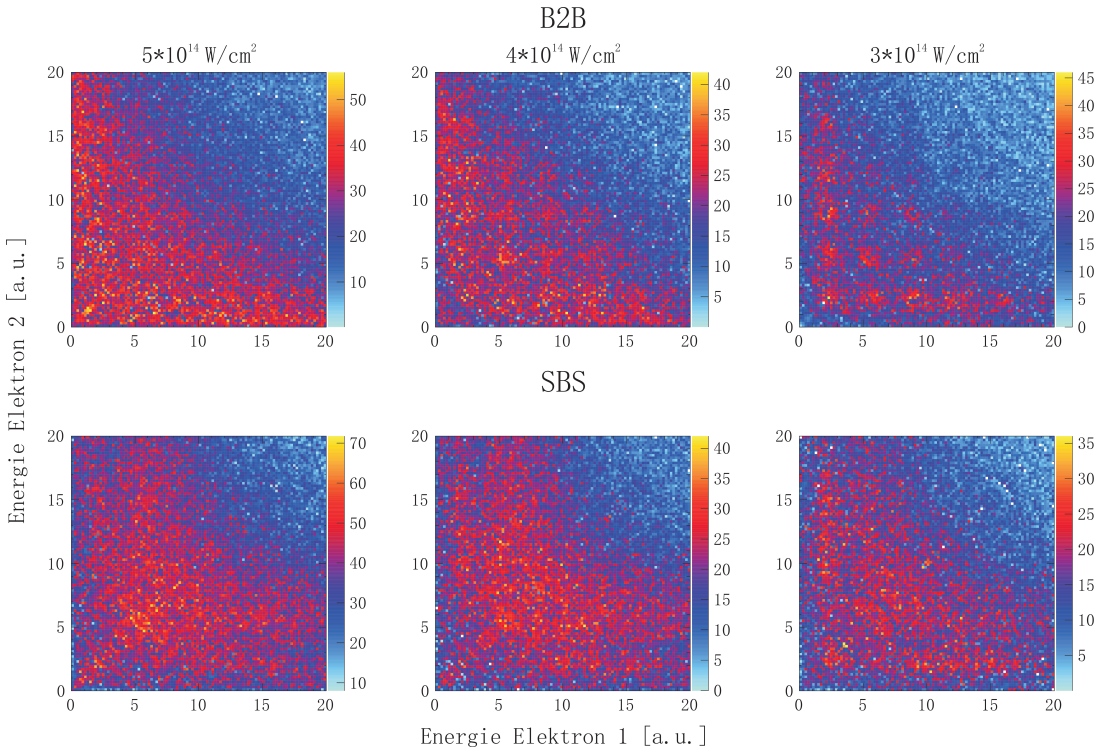


Abbildung 5.16.: Vergleiche mit Abb. 5.15: Während bei Abb. 5.15 beide Elektronenimpulse gemessen wurden, ist hier einer der beiden Elektronenimpulse mit Hilfe des Ionen- sowie eines gemessenen Elektronenimpulses berechnet worden. Die Achsen sind im Vergleich zu Abb. 5.15 leicht anders gewählt. H_2^+-Untergrundreduzierung wurde angewendet.

Zum Vergleich zeigt Abb. 5.16 die identischen Spektren wie Abb. 5.15 - allerdings wurde hierbei ein Elektronenimpuls über die Impulserhaltung der beiden anderen gemessenen Teilchen berechnet. Auch hier sind die Quantisierungsstrukturen bei B2B-Emission klar erkennbar und mögliche Totzeiteffekte bei SBS-Emission entfernt.
In beiden Darstellungen fallen die von der Intensität unabhängigen Positionen der Maxima für B2B-Emission auf. Allerdings zeigt Abb. 5.5 (oben rechts), dass sich die ATI-Maxima nach Einfachionisation bei hohen Energien sehr wohl bei unterschiedlichen Intensitäten an verschiedenen Positionen befinden - nämlich genau um die Differenz des ponderomotorischen Potentials, das einer halben Photonenenergie entspricht, verschoben. Nur die durch Freeman-Resonanzen entstehenden niederenergetischen Maxima bleiben in der Einfachionisation von der Intensität unabhängig an der gleichen Position. Diese Beobachtungen führen zu der Vermutung, dass auch die in der Doppelionisation auftretende Quantisierungsstruktur durch einen den Freeman-Resonanzen ähnlichen Prozess entsteht, der intensitätsunabhängige Maxima erzeugt.

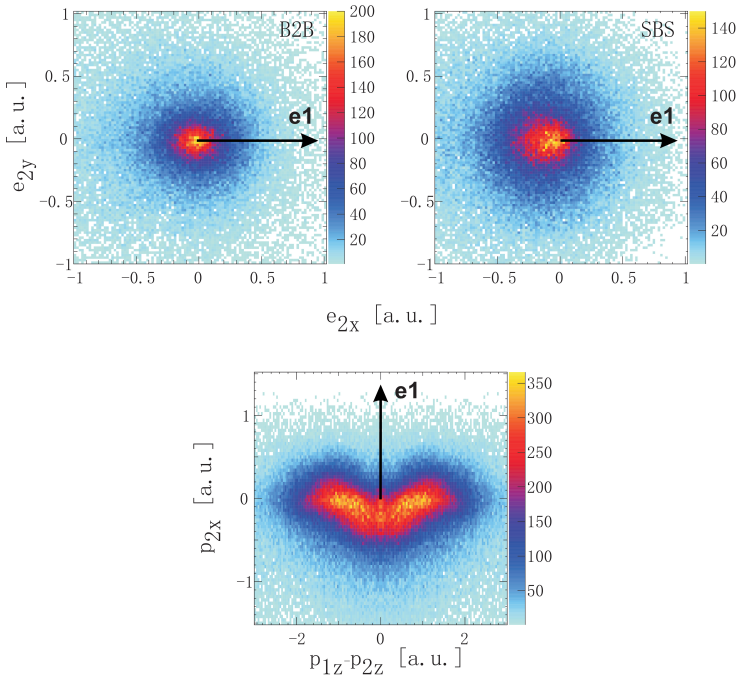


Abbildung 5.17.: Obere Reihe: Impulsverteilung des zweiten Elektrons relativ zum ersten (Pfeil) in der Ebene senkrecht zur Polarisationsrichtung bei der Intensität (I1) für B2B-Emission (links) bzw. SBS-Emission (rechts). Unten: x-Koordinate der Spektren in der oberen Reihe aufgetragen gegen die Differenz der z-Komponente im Laborkoordinatensystem. Der Impuls eines Elektrons wurde hierbei über die Impulserhaltung und Messung der Impulse der beiden anderen Teilchen berechnet. H_2^+-Untergrundreduzierung wurde angewendet.

Eine wichtige Information, um zwischen verschiedenen Modellen der Doppelionisation unterscheiden zu können, ist die Zeit $t_{21} = t_2 - t_1$, die von der ersten (t_1) bis zur zweiten (t_2) Ionisation verstreicht. Diese Zeit beträgt maximal einige[10] 10 fs und ist daher mit der COLTRIMS-Technologie nicht direkt messbar. Allerdings geben andere Messgrößen einen Hinweis darauf, ob beide Elektronen im gleichen Maximum des Laserpulses erzeugt wurden: Das linear polarisierte Laserfeld beschleunigt Elektronen ausschließlich in Polarisationsrichtung. In der Ebene senkrecht dazu können Impulse $p \neq 0$ nur durch Rückstreuung oder gegenseitige Abstoßung der beiden Elektronen durch ihre Ladung auftreten.
In Abb. 5.17 ist dazu in der oberen Reihe die Impulsverteilung des zweiten Elektrons[11] in der Ebene senkrecht zur Polarisationsrichtung relativ zum Impulsvektor des ersten Elek-

[10] Der Laserpuls ist nur etwa 45 fs lang.
[11] Die Koordinaten x und y sind nicht mehr die des weiter oben definierten Laborkoordinatensystems. x repräsentiert hier die Impulsrichtung des ersten Elektrons in dieser Ebene.

trons zu sehen. Im linken Spektrum sind nur Ereignisse mit B2B-Emission ausgewählt worden, im rechten solche mit SBS-Emission. Während Elektronen, die in entgegengesetzte z-Richtung emittiert werden (B2B), keine messbare Ablenkung in der Ebene senkrecht dazu erfahren, zeigen SBS-Elektronen eine deutliche Abstoßung. Gut zu erkennen ist das auch in der Darstellung darunter: Abhängig von der Impulsdifferenz in Polarisationsrichtung ist eine klare Abstoßung für kleine Differenzen ($\Delta p_z \approx 0$) zu sehen. Das lässt darauf schließen, dass der zu SBS-Emission führende Mechanismus beide Elektronen nahezu gleichzeitig ionisiert.
Diese Gleichzeitigkeit der Ionisation führt zu einer starken Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen, die nicht nur den beobachteten Abstoßungseffekt verursacht, sondern auch kontinuierlich Energie zwischen den Elektronen transferiert. Dabei bleibt zwar die Gesamtenergie der Elektronen erhalten, Maxima in den Energiespektren der einzelnen Elektronen verschwinden jedoch. Deshalb treten bei SBS-Emission bei der niedrigsten Intensität (Abb. 5.15 unten rechts) ausschließlich Energieerhaltungsdiagonalen und keine Quantisierungsstruktur wie bei B2B-Emission auf.
Abschließend zeigt Abb. 5.18 den Vergleich der ATI-Maxima der einzelnen Elektronen aus Einfach- und Doppelionistion. Denn der naheliegendste Prozess für Doppelionisation ist der sequentielle. Das erste sequentiell emittierte Elektron müsste jedoch die gleiche Energieverteilung aufweisen wie Elektronen aus Einfachionisation. Da die Positionen der Maxima offensichtlich verschieden sind, kann sequentielle Doppelionisation als dominanter Mechanismus ausgeschlossen werden. Außerdem ist im rechten Teil dieser Abbildung gezeigt, dass auch Ionisation aus dem Grundzustand von He^+ (rote Pfeile) nicht für die beobachteten Maxima verantwortlich ist.

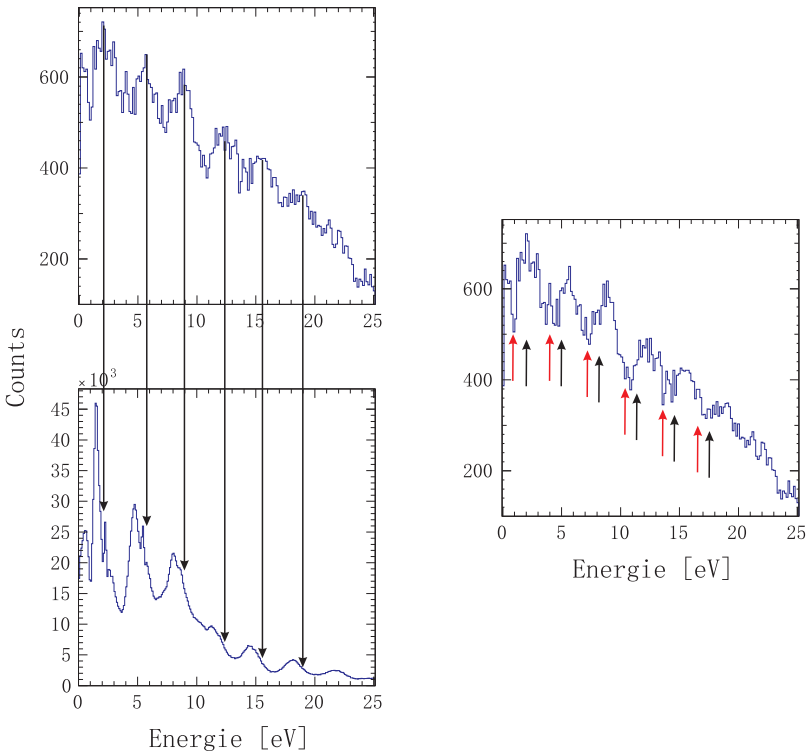


Abbildung 5.18.: Vergleich der Elektronenenergiemaxima aus Einfach- und Doppelionisation. Links oben und rechts: Energiespektrum der Elektronen nach Doppelionisation für B2B-Emission. Links unten: Energiespektrum des Elektrons nach Einfachionisation. Die Pfeile links markieren die Energiemaxima nach Doppelionisation und vergleichen sie mit denen nach Einfachionisation. Im rechten Energiespektrum sind mit Pfeilen die berechneten Positionen der Maxima eingezeichnet, die sich nach Ionisation aus den Grundzuständen von He (schwarz) bzw. He^+ (rot) ergeben würden.

5.1.5. Der Einfluss der Auswahlregeln

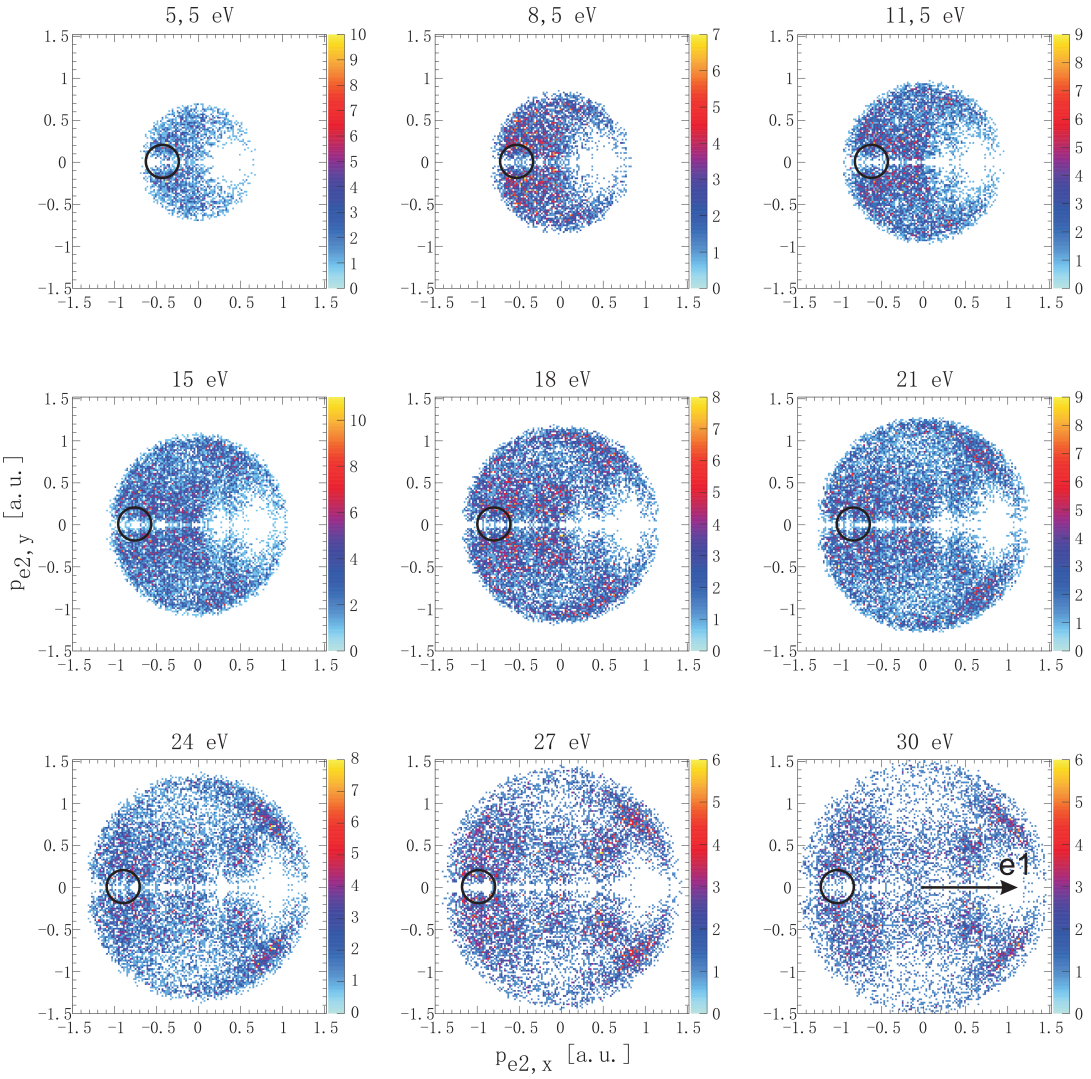


Abbildung 5.19.: Impuls eines Elektrons (e2) relativ zum anderen (e1) nach Koordinatentransformation gemessen bei der Intensität (I1): Die Impulsvektoren der beiden Elektronen spannen die $x-y$-Ebene auf, wobei die x-Achse nun die Impulsrichtung von (e1) repräsentiert. Von oben links nach unten rechts: Relativimpulsverteilungen von (e2) für die einzelnen Maxima aus Abb. 5.11, beginnend mit dem Maximum bei $5,5\ eV$ bis zum Maximum bei $30,5\ eV$. Die schwarzen Kreise markieren jeweils den Phasenraum für „equal energy sharing“ (Erklärung siehe Text) und B2B-Emission.

Wie in Kap. 2.3.5 detailliert beschrieben, ergeben sich in der Doppelionisation mit mehreren Photonen quantenmechanische Auswahlregeln, die von der Anzahl der absorbierten Photonen abhängig sind. Auswahlregel (A2) wird in Abb. 5.19 untersucht: Hier ist die Impulsverteilung eines Elektrons relativ zur Emissionsrichtung[12] (x) des anderen zu sehen. Die Auswahlregel besagt, dass beide Elektronen nicht mit gleichem Impulsbetrag („equal energy sharing“) B2B emittiert werden dürfen, wenn die Anzahl der absorbierten Photonen ungerade ist. Mit der bekannten Intensität (I1) und der resultierenden ponderomotorischen Energie $U_p = 4,5\ eV$ kann die Zahl der absorbierten Photonen direkt über das effektive Doppelionisationspotential

$$I_{p,He^{2+},eff} = I_{p,He} + U_p + I_{p,He^+} + U_p \approx 88,5\ eV \tag{5.2}$$

bestimmt werden. Für eine Doppelionisation werden folglich mindestens 29 der 400 nm-Photonen mit einer Energie von $E_{ph} = \hbar\omega = 3,14\ eV$ benötigt, die zu einer Gesamtkontinuumsenergie der Elektronen von etwa $2,5\ eV$ (erstes, nicht sichtbares Maximum) führen. Unter der Annahme einer exakten Photonenenergie- und Intensitätskalibrierung ist in Tab. 5.3 die Anzahl der absorbierten Photonen für jedes Maximum bei der Messung der Intensität (I1) aufgelistet[13].

Energie des Maximums	**Anzahl absorbierter Photonen**	**Auswahlregeln**
2,5 eV *(nicht sichtbar)*	29	*(A1),(A2),(A3)*
5,5 eV	30	
8,5 eV	31	*(A1),(A2),(A3)*
11,5 eV	32	
15 eV	33	*(A1),(A2),(A3)*
18 eV	34	
21 eV	35	*(A1),(A2),(A3)*
24 eV	36	
27,5 eV	37	*(A1),(A2),(A3)*
30,5 eV	38	

Tabelle 5.3.: Anzahl absorbierter Photonen, die zu den Maxima im Summenenergiespektrum aus Abb. 5.11 rechts führen.

Allerdings ist einerseits die Intensitätskalibrierung mit einem Fehler behaftet (≈ 20 %), andererseits variiert auch die Photonenenergie in der Größenordnung von $0,02\ eV$. Letzteres ist wegen der großen Anzahl absorbierter Photonen im Mittel vernachlässigbar; der

[12] **Achtung**: verändertes Koordinatensystem! Siehe Bildunterschrift in Abb. 5.19.

[13] Nur für (I1) sind klar sichtbare Maxima in der Summenenergie der Elektronen auszumachen, weshalb vorerst nur bei dieser Intensität der Einfluss der Auswahlregeln untersucht werden kann.

Fehler in der Intensitätskalibrierung kann jedoch zu einer relativen Verschiebung des effektiven Doppelionisationspotentials $I_{p,He^{2+},eff}$ von bis zu $1,8\ eV$ führen. Da dies aber „nur“ etwa einer halben Photonenenergie entspricht und sehr pessimistisch geschätzt ist, sollten die in Tab. 5.3 dargestellten Photonenzahlen verlässlich sein.
Somit sind in Abb. 5.19 für die entsprechenden Maxima mit einer ungeraden Anzahl absorbierter Photonen Nullstellen im Zentrum der schwarz markierten Kreise zu erwarten, da diese den Phasenraum für equal energy sharing (kurz EES) und gleichzeitig B2B-Emission kennzeichnen. In diesen Bereichen können jedoch keinerlei signifikante Zählratenunterschiede gegenüber den Maxima mit gerader Anzahl absorbierter Photonen erkannt werden.
Auswahlregel (A2) ist mit diesem Verfahren somit nicht verifizierbar, was unter anderem mit der noch immer nicht zu vernachlässigenden Breite der ATDI-Maxima zusammenhängt. Denn ein Maximum, welches aus der Absorption einer ungerade Photonenzahl resultiert, beinhaltet durch die Überschneidung mit benachbarten Maxima (gerade Photonenzahl) auch Elektronenpaare anderer Parität, die eine eventuell tatsächlich vorhandene Nullstelle auffüllen. In Zukunft werden also höhere Repetitionsraten des Lasers benötigt, um die Messung bei noch niedrigeren Intensitäten durchführen zu können und dadurch vermutlich schmalere ATDI-Maxima zu erzeugen.
In einer anderen Darstellung (Abb. 5.20) offenbart sich die gesuchte Auswahlregel aber sehr wohl. Trägt man im Koordinatensystem aus Abb. 5.19 den Winkel zwischen den beiden Elektronen in der $x-y$-Ebene gegen deren Summenenergie auf (oben links), wird schnell ersichtlich, dass mit der Bedingung EES jedes zweite ATDI-Maximum für B2B-Emission (oben rechts) ausgelöscht ist. Für SBS-Emission (Mitte rechts) sind keine Maxima erkennbar und wenn die Bedingung EES entfernt wird (unten links), treten bei B2B-Emission alle ATDI-Maxima auf (unten rechts). Das kann auf die Auswahlregeln zurückgeführt werden, weil jene Maxima ausgelöscht sind, für die laut Tab. 5.3 (A2) Gültigkeit hat. Wie bereits im Einphotonfall gesehen (SBMD$^+$99) (Kap. 2.3.5), beschränkt sich diese Nullstelle nicht auf exakte B2B-Emission, also 180^o Zwischenwinkel, sondern hat vielmehr einen Einfluss auf den gesamten Halbraum des Impulsspektrums, der in der gewählten Darstellung $e_{2x} < 0$ entspricht. Dieser Grund und die auch hier sichtbare Breite der ATDI-Maxima machen eine Beobachtung dieser Auswahlregel in Abb. 5.19 unmöglich.

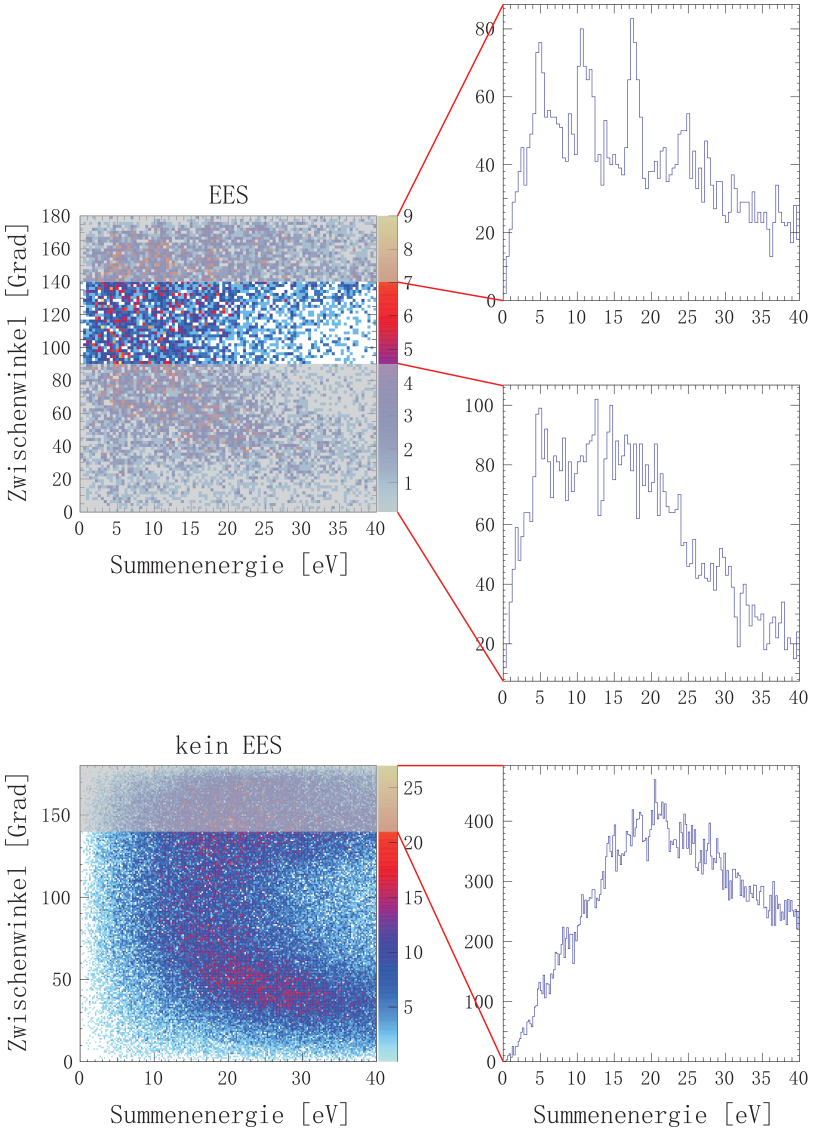


Abbildung 5.20.: Links: Der Winkel zwischen beiden Elektronenimpulsvektoren im Koordinatensystem aus Abb. 5.19 aufgetragen gegen die Summenenergie beider Elektronen mit der Bedingung EES (oben, die Energien der einzelnen Elektronen unterscheiden sich um nicht mehr als 1 eV) und ohne die Bedingung EES (unten). Rechts: Oben eine Projektion von links oben für B2B-, in der Mitte für SBS-Emission. Unten eine Projektion von links unten für B2B-Emission. Hierbei wurde der Impuls eines Elektrons berechnet und H_2^+-Untergrundreduzierung angewendet.

Nach Identifikation von (A2) sollen auch die Auswahlregeln (A1) und (A3) untersucht werden. Für ungerade absorbierte Photonenzahl existieren Nullstellen im Wirkungsquerschnitt für (Kap. 2.3.5):
(A1) Beide Impulsvektoren senkrecht zur Polarisationsrichtung: $\vec{p_1} \perp \hat{E}$ und $\vec{p_2} \perp \hat{E}$;
(A3) bei EES ($|p_1| = |p_2|$) und $\Theta_1 = \pi - \Theta_2$, wobei Θ der Winkel zwischen Polarisationsrichtung $\hat{E}$ und Impulsvektor ist.

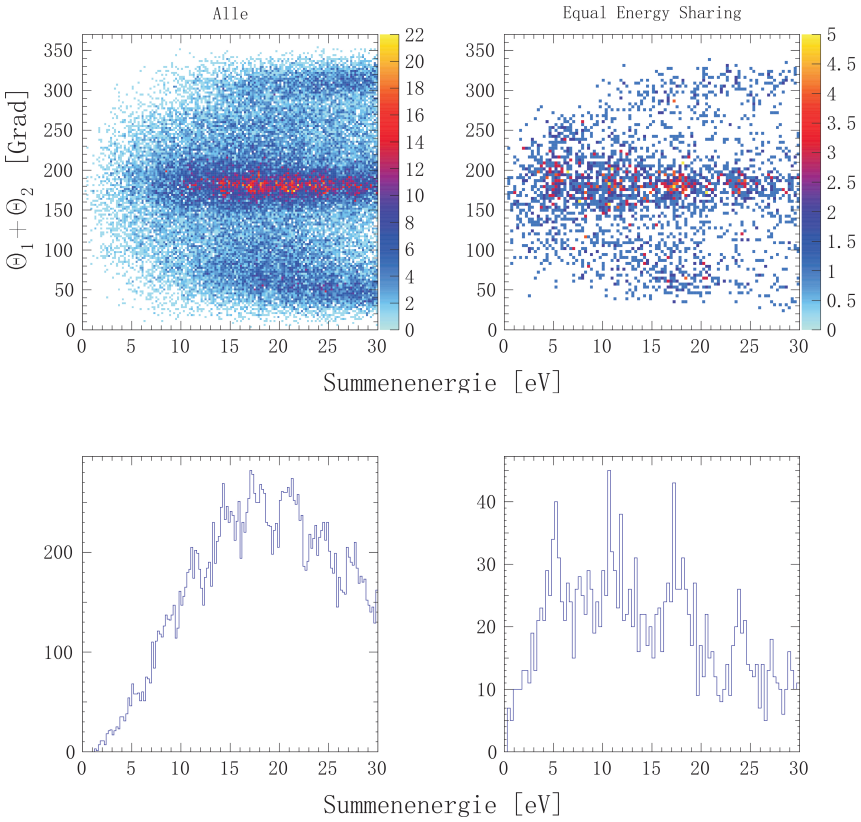


Abbildung 5.21.: Untersuchung von Auswahlregel (A3): Oben ist die Summe der Emissionswinkel Θ der beiden Elektronen aufgetragen gegen ihre Summenenergie für alle Elektronenpaare (links) und für Elektronenpaare mit der Bedingung EES (rechts). Untere Reihe: Projektionen des jeweils darüber liegenden Spektrums für $130^o < \Theta_{Sum} < 230^o$.

Mit Abb. 5.21 wird (A3) untersucht: Umgeformt führt diese Auswahlregel für EES und ungerade absorbierte Photonenzahl zu einem verschwindenden Wirkungsquerschnitt bei $\Theta_1 + \Theta_2 = \pi = 180^o$. Daher ist $\Theta_1 + \Theta_2$ gegen die Summenenergie der Elektronenpaare aufgetragen, oben links für alle Elektronenpaare und oben rechts für die Paare, die sich in ihrer Energie nur um maximal 1 eV unterscheiden - also für equal energy sharing. Im letzteren Fall sollten laut Tabelle 5.3 die links auftretenden Maxima bei $\Theta_1 + \Theta_2 = 180^o$

und den entsprechenden Energien verschwinden. Das ist auch der Fall: Trotz der niedrigen Zählrate sind in der Projektion unten rechts nur vier Maxima erkennbar bei etwa 5 eV, 11 eV, 17 eV sowie 24 eV. Das sind erneut jene Maxima, die laut Tab. 5.3 nicht von (A3) betroffen sind. Ohne die Bedingung EES sind dagegen alle ATDI-Maxima vertreten (unten links).

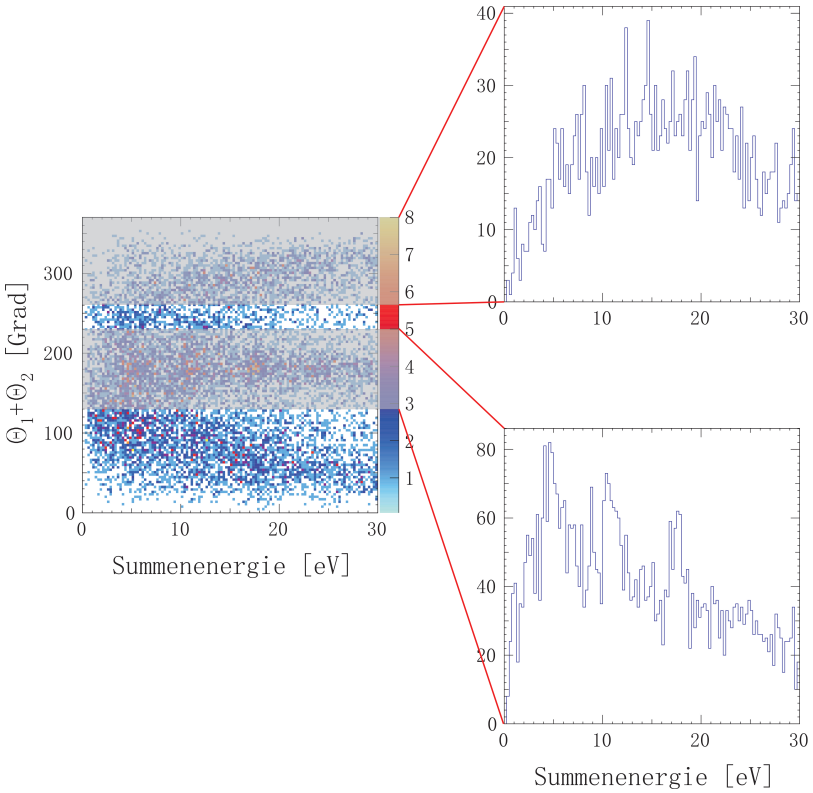


Abbildung 5.22.: Links: das Spektrum aus Abb. 5.21 mit einem berechneten Impulsvektor. Rechts sind Projektionen davon für $260^o < \Theta_{Sum} < 360^o$ (oben) und $130^o < \Theta_{Sum} < 230^o$ (unten) gezeigt. H_2^+-Untergrundreduzierung wurde angewendet.

Da für den Fall eines berechneten Impulsvektors eines Elektrons - wie in Abb. 5.11 gesehen - die Energieauflösung unzureichend für die Erkennung aller ATDI-Maxima ist, kann ohne die Bedingung EES auch kein aussagekräftiges Spektrum generiert werden. Trotz schlechterer Auflösung bietet sich jedoch an, das Spektrum aus Abb. 5.21 oben rechts in Abb. 5.22 links mit einem berechneten Impulsvektor zu betrachten, da mehr Ereignisse verwendet werden können. Das führt zu einer sinnvollen Zählrate bei etwa $\theta_{Sum} \approx 300^o$,

wenn also beide Elektronen in eine Richtung emittiert werden (SBS)[14]. Die Projektionen an den entsprechenden Stellen zeigen, dass nur für $\Theta_1 + \Theta_2 \approx 180^o$ (unten rechts) jedes zweite ATDI-Maximum verschwindet, wobei für den Fall von SBS-Emission (oben rechts) auch beispielsweise bei einer Energie von 14 eV ein Maximum existiert. Das kann als weiteres starkes Indiz gewertet werden, dass die quantenmechanische Auswahlregel diesen Effekt verursacht.
Zuletzt soll Auswahlregel (A1) mit Abb. 5.23 untersucht werden. Hierzu sind die korrelierten Θ-Winkelverteilungen der Elektronenpaare für jene Summenenergiemaxima, die aus der Absorption einer geraden (links) bzw. ungeraden (rechts) Zahl von Photonen entstehen, einander gegenübergestellt. Die verwendete lineare Polarisation und die dadurch resultierende bevorzugte Emission in Polarisationsrichtung (also nach 0^o oder 180^o) führt sowohl bei ungerader als auch bei gerader absorbierter Photonenzahl zu einer verschwindenden Zahl an Ereignissen bei $(90^o|90^o)$ und lässt daher keine Aussage über diese Auswahlregel zu.
Zusammenfassend ist es mit den vorliegenden Daten gelungen, die bisher für Starkfeldionisation nur theoretisch vorhergesagten Regeln (A2) und (A3) zu bestätigen. (A1) konnte aufgrund der geringen Zählrate weder bestätigt noch widerlegt werden.

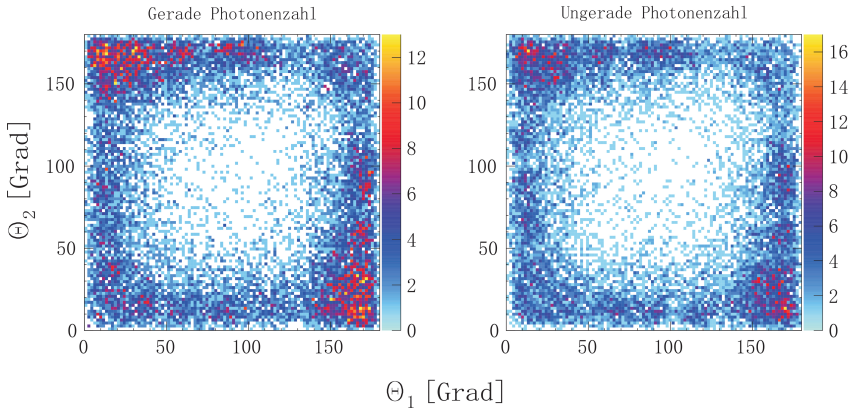


Abbildung 5.23.: Untersuchung von Auswahlregel (A1): Der Winkel zur Polarisationsachse Θ_2 eines der beiden emittierten Photonen aufgetragen gegen den Winkel Θ_1 des anderen für alle Summenenergiemaxima mit (links) gerader und (rechts) ungerader Photonenzahl.

[14]Summenwinkel von $0^o - 90^o$ wären genauso geeignet für diese Projektion. Allerdings zeigt der Impulsvektor des gemessenen Elektrons hierbei in Richtung Elektronendetektor und weist dadurch eine schlechtere Impulsauflösung auf.

Höhere Intensitäten

Bei der Intensität (I2) lässt die Sichtbarkeit von Quantisierungsstrukturen sowohl im Summenenergiespektrum der Elektronen als auch im korrelierten Energiespektrum nach und sie verschwindet sogar gänzlich bei (I3). Kann eine ähnliche Entwicklung auch bei der Betrachtung des Einflusses der Auswahlregeln beobachtet werden?
Dafür sind in Abb. 5.24 die gleichen Spektren wie in Abb. 5.20 (Intensität (I1)), die die Auswirkungen von Auswahlregel (A2) behandeln, für die höheren Intensitäten (I2) und (I3) zu sehen. Während bei (I2) mit der Bedingung EES und für B2B-Emission (Mitte oben) noch zwei Maxima zu erkennen sind, verschwinden diese für (I3) gänzlich (Mitte unten).

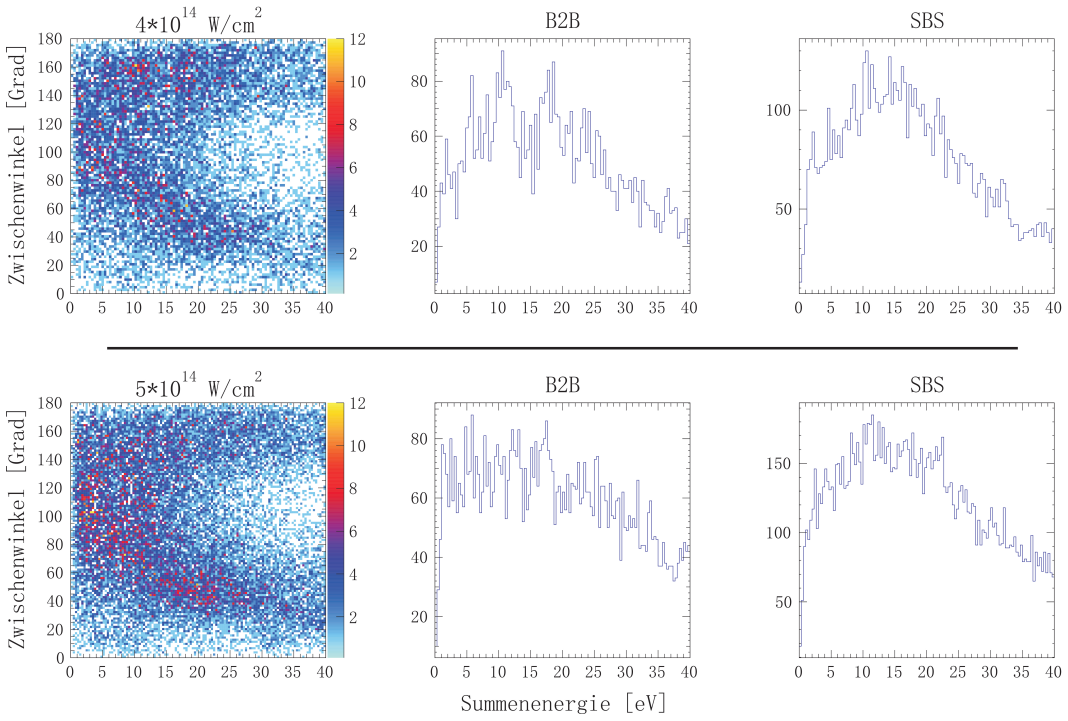


Abbildung 5.24.: Intensitätsabhängige Entwicklung der experimentellen Nachweisbarkeit von Nullstellen des Wirkungsquerschnitts, die durch Auswahlregel (A2) entstehen. Oben links ist für die Intensität (I2) der Winkel zwischen den Elektronenpaaren aus Doppelionisation im Koordinatensystem von Abb. 5.19 gegen deren Summenenergie mit der Bedingung EES aufgetragen. In der Mitte ist eine Projektion dieses Histogramms für Werte des Zwischenwinkels von $140^o - 180^o$ zu sehen, rechts für $0^o - 90^o$. In der unteren Reihe sind die gleichen Spektren für Intensität (I3) gezeigt. Einer der Impulse der beiden Elektronen wurde hierbei berechnet und anschließend H_2^+-Untergrundreduzierung angewendet.

Ähnliches zeigt sich für die Auswirkungen von Auswahlregel (A3) in Abb. 5.25 (vgl. mit Abb. 5.22): Bei der Intensität (I2) (Mitte oben) sind noch sich abwechselnde Maxima und Minima bei den gleichen Summenenergiewerten wie bei (I1) angedeutet. Mit der leicht höheren Intensität (I3) können diese kaum noch ausgemacht werden (Mitte unten). Allerdings muss bei (I2) durch das um etwa eine Photonenenergie größere effektive Doppelionisationspotential $I_{p,He^{2+},eff}$ ein Photon mehr absorbiert werden, um die gleiche Kontinuumsenergie der Elektronen wie im Fall von (I1) zu erreichen. Daher sollte sich die Gültigkeit der Auswahlregeln um genau ein Maximum verschieben und somit auch die Position des sichtbaren Maximums in den Abbildungen 5.24 und 5.25. Das ist jedoch offensichtlich nicht der Fall und kann mindestens in dreierlei Weise interpretiert werden:

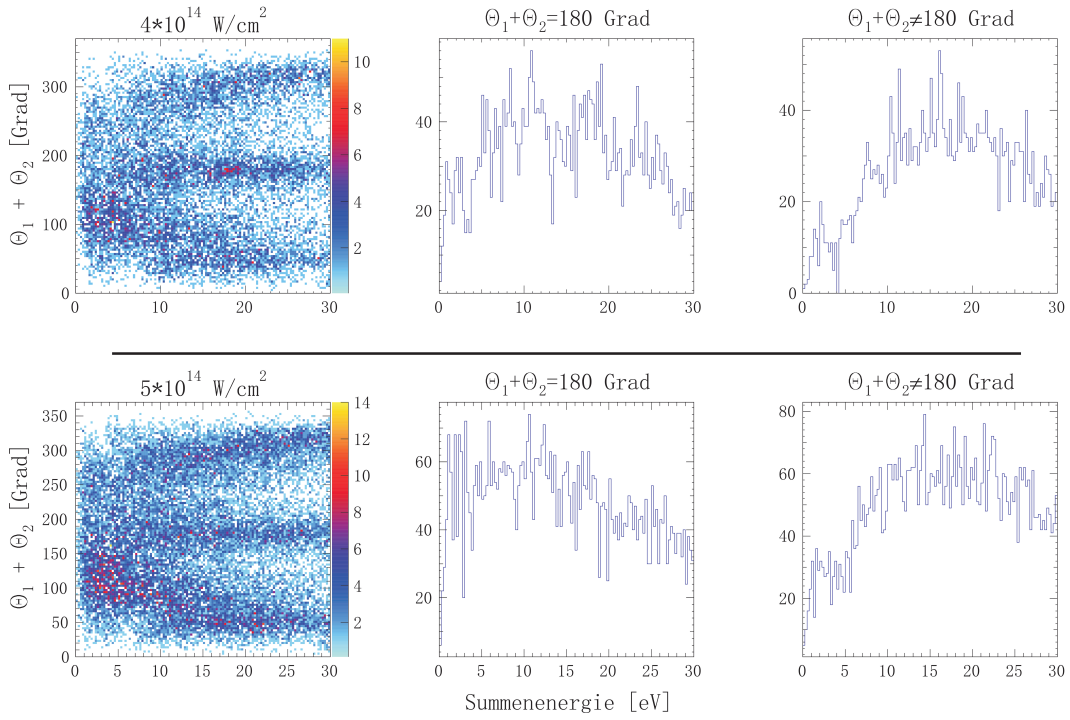


Abbildung 5.25.: Intensitätsabhängige Entwicklung der experimentellen Nachweisbarkeit von Nullstellen des Wirkungsquerschnitts, die durch Auswahlregel (A3) entstehen. Oben links ist für die Intensität (I2) die Winkelsumme $\Theta_1 + \Theta_2$ der Elektronenpaare aus Doppelionisation gegen deren Summenenergie mit der Bedingung EES aufgetragen. In der Mitte ist eine Projektion dieses Histogramms für Werte der Winkelsumme von $150^o - 210^o$ zu sehen, rechts für $260^o - 360^o$. In der unteren Reihe sind die gleichen Spektren für Intensität (I3) gezeigt. Einer der Impulse der beiden Elektronen wurde hierbei berechnet und anschließend H_2^+-Untergrundreduzierung angewendet.

(a) Die beobachteten Maxima im von den Auswahlregeln vorhergesagten Phasenraum haben ihren Ursprung nicht wie erwartet in den Auswahlregeln. Da der Doppelionisationsmechanismus nicht vollständig klar ist, könnte auch dieser für die Maxima verantwortlich sein.
(b) Ein den Freeman-Resonanzen ähnlicher Prozess in der Doppelionisation sorgt für intensitätsunabhängige Summenenergien der emittierten Elektronen. Damit wären die Zahl der benötigten Photonen sowie die Positionen der Summenenergiemaxima ebenfalls intensitätsunabhängig und können auf die Auswahlregeln zurückgeführt werden.
(c) Durch das Bereitstellen der zusätzlichen Energie, welche benötigt wird, um das höhere effektive Ionisationspotential bei (I2) zu überwinden, wird die Parität des Endzustandes nicht geändert.
Für Interpretation (b) und gegen (a) sprechen allerdings die Erkenntnisse aus den Abbildungen 5.15 und 5.16. Das Quantisierungsmuster im korrelierten Energiespektrum ist intensitätsunabhängig und legt daher einen Freeman-Prozess nahe. Die Auswahlregeln sind außerdem hochdifferentiell formuliert. Ein Doppelionisationsmechanismus, der zufällig deren Auswirkungen auf die Messgrößen imitiert, scheint daher sehr unwahrscheinlich.
Interpretation (c) wäre zugegebenermaßen sehr überraschend. Warum sollte ein zusätzlich absorbiertes Photon zwar Energie übertragen, aber die Parität des Zustandes nicht ändern? Sie wäre jedoch verständlicher, wenn das Konzept „Photon“ in einem starken Laserfeld so nicht existiert und die Energiequantisierung ausschließlich aus der zeitlichen Periodizität verschiedener entstehender Wellenpakete und deren Interferenz resultiert (siehe Abb. 2.3 und Text dazu). Und auch die Definition des ponderomotorischen Potentials U_p als gemittelte Zitterbewegung im Feld sagt nichts darüber aus, wie die zusätzlich benötigte Energie aus dem Feld aufgenommen werden muss[15]. Messungen und theoretische Rechnungen können hierüber aber vermutlich in absehbarer Zeit Klarheit schaffen.

5.1.6. Korrelationsmaß

Eine Untersuchung der Winkelkorrelation beider Elektronen aus Doppelionisationsereignissen mit Hilfe eines speziell hierfür definierten Korrelationsmaßes (beschrieben in Kap. 2.3.4) lieferte in den TDSE-Rechnungen aus der Dissertation von A. Zielinksi (Zie15) die Erkenntnis, dass Elektronenpaare, die im korrelierten Energiespektrum (Abb. 5.12) ein Maximum auf den Energieerhaltungsdiagonalen bilden, niedrigere Korrelation aufweisen als solche zwischen den Maxima[16]. Das Korrelationsmaß ist derart definiert, dass es direkt auf experimentelle Daten angewendet werden kann. Da gerade im vorliegenden Experiment jedoch durch die extrem niedrige Zählrate nur vergleichsweise wenige Ereignisse gemessen wurden, kann nicht für jeden Punkt im korrelierten Energiespektrum das Korrelationsmaß berechnet werden.
Deshalb werden nur zwei unterschiedliche Fälle betrachtet: Elektronenpaare, die (a) die neun niederenergetischsten Maxima bilden und (b) zwischen diesen Maxima liegen. In

[15] Generell ist U_p im Wellenbild formuliert. Wie sich dieses Modell im Photonenbild verhält, ist nicht trivial ersichtlich.
[16] In Referenz (Zie15) auf Seite 119 in Abb. 6.17 rechts dargestellt.

Abb. 5.26 sind Fall (a) links und Fall (b) rechts dargestellt. Für diese beiden Fälle werden die Winkel Θ der beiden Elektronen gegeneinander aufgetragen, wobei für die Achsen des Histrogramms jeweils 50 Bins gewählt wurden. Damit ist eine $50x50$-Matrix generiert, die anschließend entsprechend auf Korrelation untersucht wird. Der Wert des Korrelationsmaßes bewegt sich daher in den Grenzen $[1; 50]$, wobei niedrige Werte weniger Korrelation bedeuten als höhere.
Die für die in Abb. 5.26 dargestellten Schnitte ermittelten Werte für das Korrelationsmaß bei der Messung mit Intensität (I1) sind in Tab. 5.4 eingetragen.

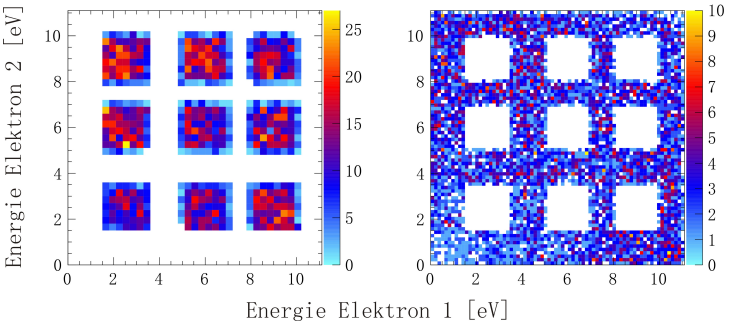


Abbildung 5.26.: Schnitte zur Berechnung des Korrelationsmaßes. Links: die niederenergetischsten Maxima, rechts: der Rest zwischen den Maxima.

Schnitt	*Korrelationsmaß*
(a)	13,2
(b)	12,9

Tabelle 5.4.: Experimentell bestimmte Werte des Korrelationsmaßes für zwei verschiedene Fälle (siehe Abb. 5.26).

Die Abschätzung der Fehler der in Tab. 5.4 aufgeführten Werte ist äußerst kompliziert. Um eine grobe Aussage darüber zu ermöglichen, wird das Korrelationsmaß für einen Bruchteil der Daten berechnet. Wenn nur ein Viertel (die Hälfte) der Messdaten verwendet wird, ergeben sich Werte für das Korrelationsmaß von (a) $16,3$ $(13,8)$ sowie (b) $14,6$ $(13,8)$. In erster Näherung kann der Fehler des Wertes des Korrelationsmaßes daher mit etwa ± 3 angegeben werden, womit der Unterschied des Korrelationsmaßes zwischen (a) und (b) nicht statistisch signifikant ist.
Im Experiment kann somit kein verringertes Maß an Korrelation für Elektronenpaare, die zu den Maxima im korrelierten Energiespektrum führen, bestätigt werden. Die hohen Absolutwerte sprechen aber dafür, dass es sich bei den Effekten - insbesondere bei der

beobachteten Quantisierungsstruktur - nicht um sequentielle Doppelionisation handelt, da in diesem Fall keinerlei Korrelation vorliegen würde und die Werte deutlich kleiner wären.

5.1.7. Winkelverteilungen

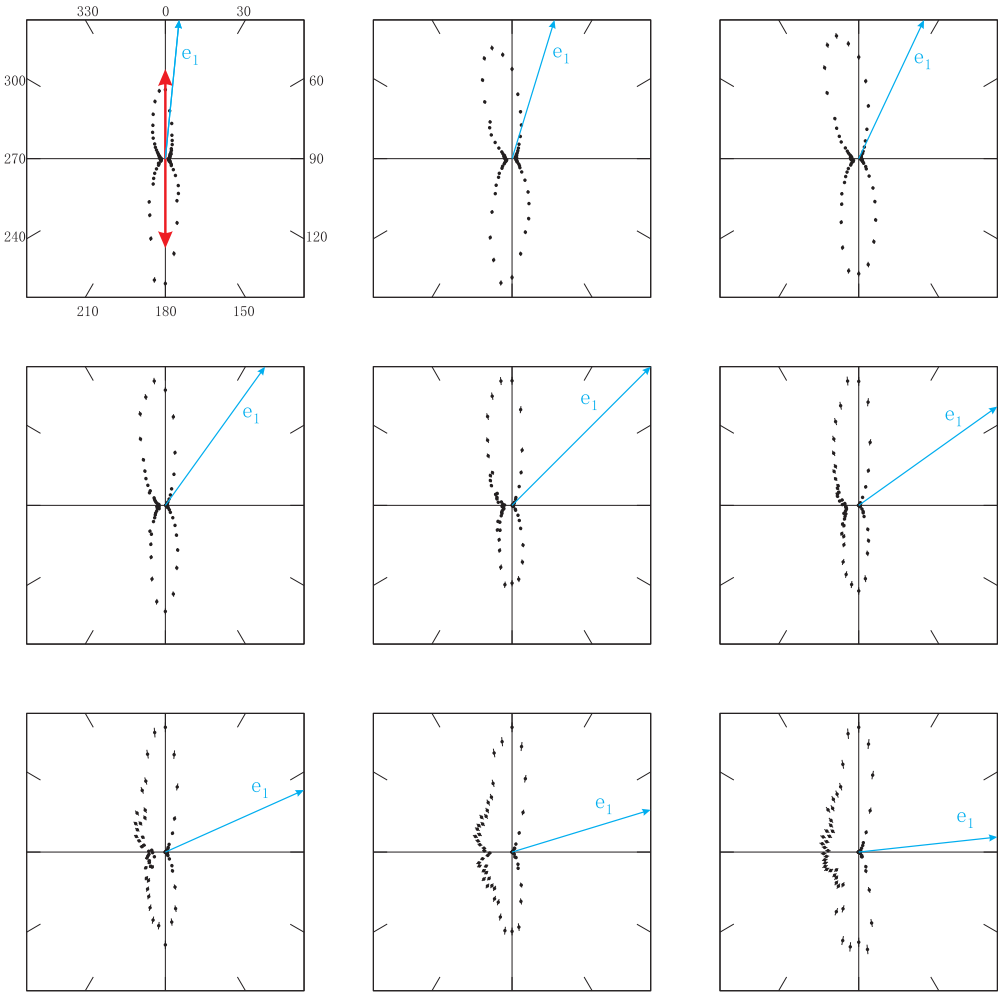


Abbildung 5.27.: Polardarstellungen der Winkelverteilungen (Angaben in *Grad*, siehe Histogramm links oben) des über die Impulserhaltung berechneten Elektrons (e_2) abhängig vom Emissionswinkel Θ_1 des gemessenen Elektrons (e_1). Von oben links nach unten rechts: $0\ Grad < \Theta_1 < 10\ Grad$ aufsteigend bis $80\ Grad < \Theta_1 < 90\ Grad$. Blaue Pfeile symbolisieren jeweils die gemittelte Emissionsrichtung des gemessenen Elektrons, rote die Polarisationsrichtung des Laserlichts. Der Emissionswinkel des berechneten Elektrons wurde auf $\pm 20\ Grad$ um die Ebene, die aus Polarisationsachse und Emissionsrichtung des gemessenen Elektrons aufgespannt wird, beschränkt und die Elektronenenergien auf jeweils $< 100\ eV$.
H_2^+-Untergrundreduzierung wurde angewendet.

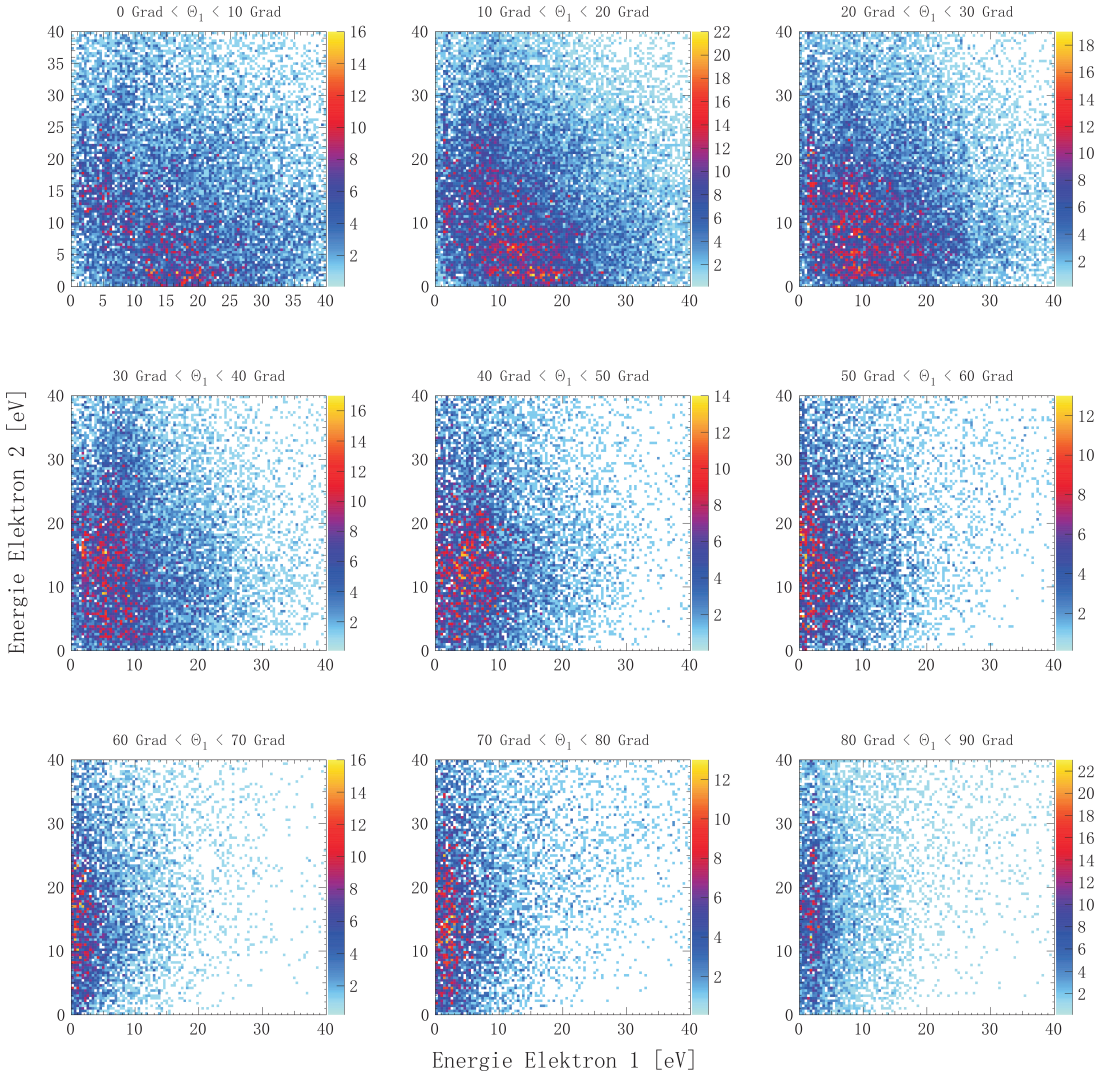


Abbildung 5.28.: Korrelierte Energiespektren korrespondierend zu den Phasenraumschnitten aus Abb. 5.27. *Energie Elektron* 1 repräsentiert hierbei die Energie des gemessenen Elektrons, *Energie Elektron* 2 die des über die Impulserhaltung berechneten. H_2^+-Untergrundreduzierung wurde angewendet.

In den vorangegangenen Betrachtungen war vor allem die Unterscheidung zwischen B2B- und SBS-Emission von Bedeutung. Noch mehr Aufschluss geben die hochdifferentiellen Winkelverteilungen der Elektronen, die in Abb. 5.27 dargestellt sind. Je kleiner der Winkel Θ_1 des durch einen blauen Pfeil repräsentierten Elektrons e_1 relativ zur Polarisationsrichtung, desto mehr überwiegt B2B- der SBS-Emission. Außerdem sorgt die Elektron-Elektron Abstoßung, die bereits im vorhergehenden Abschnitt beobachtet wurde, für eine Brechung der Symmetrie: Das dargestellte Elektron e_2 wird offensichtlich bei kleinen Winkeln Θ_1

von e_1 in die entgegengesetzte Halbebene gedrückt. Hin zu größeren Winkeln nimmt dieser Effekt ab und es kommt vermehrt zu SBS-Emission, bis bei $\Theta_1 \approx 90^o$ SBS- und B2B-Emission etwa gleichhäufig auftreten.
Die Energieaufteilung auf die beiden Elektronen kann Abb. 5.28 entnommen werden. Dabei gehören Spektren an der gleiche Position innerhalb der Abbildungen 5.27 sowie 5.28 zu gleichen Bedingungen und können direkt miteinander verglichen werden. Zu größeren Winkeln Θ_1 wird die Energieaufteilung immer ungleicher.

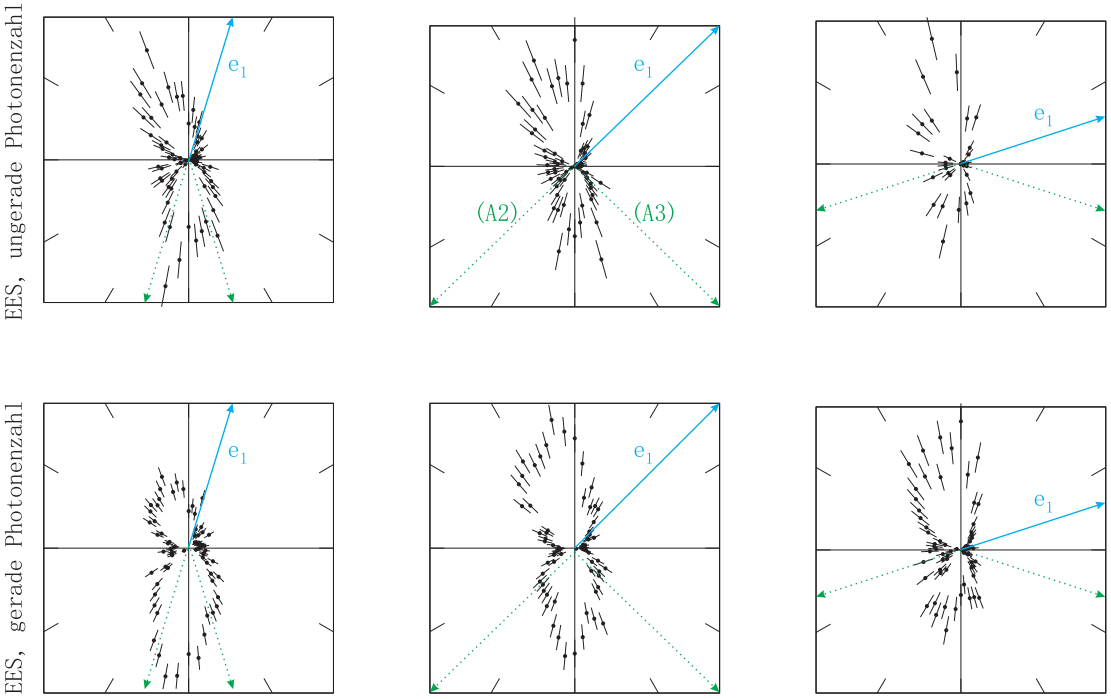


Abbildung 5.29.: Polardarstellungen der Winkelverteilungen des über die Impulserhaltung berechneten Elektrons abhängig vom Emissionswinkel Θ_1 des gemessenen Elektrons (e1) für EES. Obere Reihe: Beide Elektronen tragen eine Energie von etwa 7 eV, die Anzahl der absorbierten Photonen ist ungerade. Untere Reihe: Beide Elektronen tragen eine Energie von etwa $5,5$ eV, die Anzahl der absorbierten Photonen ist gerade. Von links nach rechts: $0 < \Theta_1 < 30$, $30 < \Theta_1 < 60$ und $60 < \Theta_1 < 90$. Mit grünen gestrichelten Pfeilen sind die von den Auswahlregeln (A2) und (A3) vorhergesagten Minima im Wirkungsquerschnitt eingezeichnet, die nur mit der Bedingung EES (obere Reihe) gelten sollten. H_2^+-Untergrundreduzierung wurde angewendet.

In der oberen Reihe - bei kleinen Winkeln - sind außerdem die beobachteten Quantisierungsstrukturen erkennbar, besonders ausgeprägt für $0\ Grad < \Theta_1 < 10\ Grad$. Die spannende Frage ist jedoch, wie Elektron e_1 seinen Impuls senkrecht zur Polarisation er-

halten hat. Denn dieser kann nur durch den Elektron-Elektron Stoß erzeugt worden sein oder durch Streuung am Kern. Für einen Elektron-Elektron Stoß muss das zweite Elektron jedoch den gleichen Impulsbetrag in dieser Komponente in entgegengesetzter Richtung erhalten. Dass die Impulsvektoren des zweiten Elektrons für große Θ_1 trotzdem so dominant in Laserpolarisationsrichtung orientiert sind, liegt an der asymmetrischen Energieaufteilung. Beide Elektronen tauschen kaum Energie durch den Stoß aus und erhalten damit nur einen kleinen Impuls senkrecht zur Polarisationsrichtung. e_1 erhält vom Laserfeld mit größer werdendem Θ_1 scheinbar kaum Energie, e_2 jedoch eine deutlich größere als die durch den Stoß ausgetauschte. Damit kann Θ_1 groß sein bei gleichzeitig kleinem Θ_2.
Je differentieller die Winkelverteilungen betrachtet werden, desto mehr kann man aus diesen lernen. Gleichzeitig verringert sich dadurch die Zählrate drastisch, weshalb für den hier behandelten seltenen Fall der nichtsequentiellen Doppelionisation teilweise nicht mehr genügend gemessene Ereignisse vorhanden sind. Interessant sind vor allem die Vergleiche zwischen Phasenräumen, in welchen Auswahlregeln einen Einfluss haben, und solchen, die nicht von diesen betroffen sind. Dieser Vergleich ist in Abb. 5.29 zu sehen. Hier ist jeweils equal energy sharing gegeben und zusätzlich oben (unten) ein Phasenraum ausgewählt, der einer Summenenergie entspricht, die mit einer ungeraden (geraden) Zahl absorbierter Photonen erreicht wird. Die Spektren der oberen Reihe sind damit von den Auswahlregeln betroffen, die der unteren Reihe nicht (siehe Tab. 5.3). Die niedrigere Zählrate erzwingt ein größeres Winkelintervall, über welches integriert werden muss. Dennoch sind in beiden Fällen für kleine Winkel Θ_1 (linke Spalte) deutlich die Auswirkungen der Elektron-Elektron Wechselwirkung - wie schon in Abb. 5.27 gesehen - zu erkennen. Diese und die Spektren der mittleren Spalte weisen aber auch Unterschiede auf, wobei für den Phasenraum, den die Auswahlregeln betreffen (oben), weniger Zählrate bei B2B-Emission zu finden ist, was konsistent mit den Auswirkungen von (A2) und (A3) ist (grüne gestrichelte Pfeile). In der rechten Spalte sind im Rahmen der statistischen Fehler keine Unterschiede zu erkennen. Hier betreffen die Auswahlregeln aber auch Phasenräume, die aufgrund der linearen Polarisation ohnehin kaum besetzt sind.
Unterschiede in den Winkelverteilungen sollten auch zu sehen sein, wenn Elektronen mit ähnlicher Energie und solche, die sehr asymmetrische Energieaufteilung aufweisen, verglichen werden. Man erwartet deutlich stärkere Abstoßung zwischen Elektronen mit ähnlichen Kontinuumsenergien. Abb. 5.30 zeigt aber sowohl für Elektronen, deren Energie sich um nur 3 eV unterscheidet, signifikante Abstoßung (obere Reihe) als auch für solche mit einem energetischen Unterschied von 12 eV (unten). Vielmehr liegen die größten Unterschiede in den allgemeinen Strukturen der Winkelverteilungen. Die niedrige Zählrate vor allem unten rechts und in der Mitte unten machen Aussagen schwieriger, jedoch lässt sich eine breitere Verteilung für sehr asymmetrische Energieaufteilung beobachten. Außerdem fällt oben rechts ins Auge, dass B2B-Emission stark unterdrückt ist, jedoch eine so bisher nicht beobachtete erhöhte Wahrscheinlichkeit der Emission für einen Zwischenwinkel von 180^o auftritt.

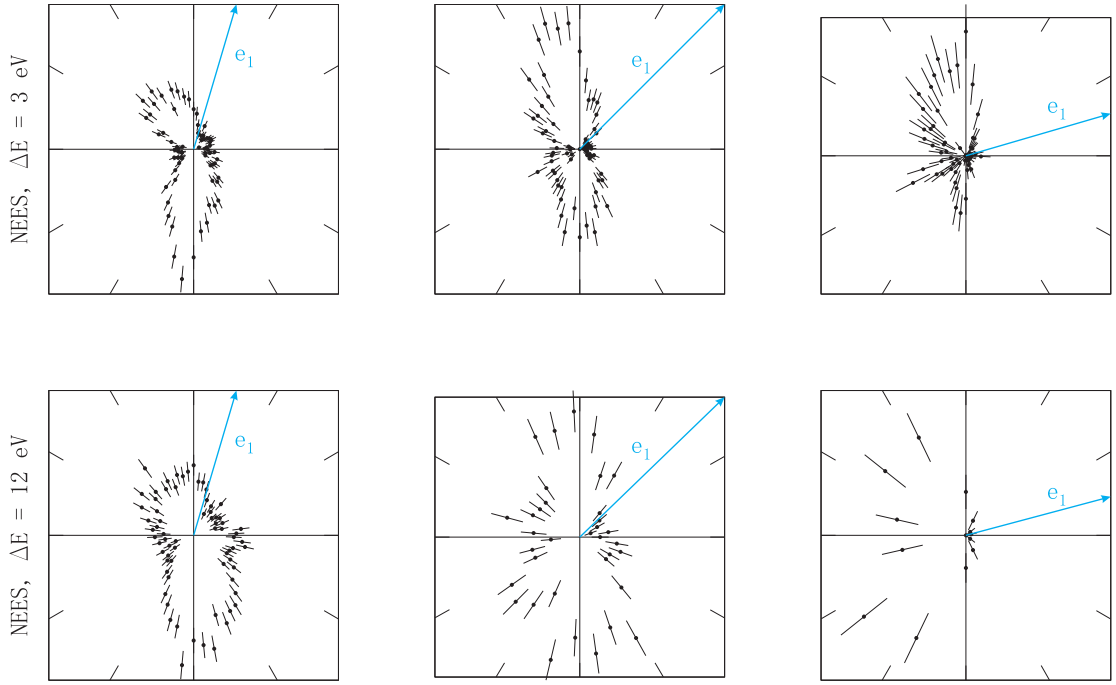


Abbildung 5.30.: Polardarstellungen der Winkelverteilungen des über die Impulserhaltung berechneten Elektrons abhängig vom Emissionswinkel Θ_1 des gemessenen Elektrons für Nicht-EES. Obere Reihe: Das gemessene Elektron (e1) trägt eine Energie von etwa $8,5\ eV$, das berechnete $5,5\ eV$. Untere Reihe: Das gemessene Elektron trägt eine Energie von etwa $15\ eV$, das berechnete $2,5\ eV$. Von links nach rechts: $0 < \Theta_1 < 30$, $30 < \Theta_1 < 60$ und $60 < \Theta_1 < 90$. H_2^+-Untergrundreduzierung wurde angewendet.

5.1.8. Modellbetrachtung

Zusammenfassend handelt es sich demnach um Doppelionisationsprozesse, die

- nichtsequentiell - also mit mindestens einem Rückstoßschritt - ablaufen.
- aus energetischen Gründen nicht mit einem Rückstoßschritt auskommen - weder für RESI noch für direkte Stoßdoppelionisation (siehe Kap. 2.3.1).
- bei Intensität (I1) zu gleichen Teilen back-to-back- und side-by-side-Emission herbeiführen.
- im Fall von back-to-back-Emission Elektronen erzeugen, deren Energiespektren jeweils ATI-Strukturen zeigen.
- beide Elektronen bei side-by-side-Emission nahezu gleichzeitig emittieren.
- für side-by-side-Emission mit steigender Intensität höhere Impulsbeträge produzieren.
- für back-to-back-Emission Impulsbeträge produzieren, die nahezu unabhängig von der Intensität sind.
- für back-to-back-Emission Kontinuumsenergien der einzelnen Elektronen erzeugen, die scheinbar intensitätsunabhängig sind.
- Elektronenpaare erzeugen, die korreliert sind.

Die klassischen drei Prozesse sind daher in ihrer einfachsten Form ausgeschlossen: Direkte Stoßdoppelionisation und RESI sind energetisch nicht möglich. Zusätzlich würde RESI zeitverzögert emittierte Elektronen erzeugen, wie auch Doppelionisation über einen doppelt angeregten Zwischenzustand.
Vorstellbar wäre eine Überlagerung (mindestens) zweier verschiedener Mechanismen, einer mit (a) B2B- und einer mit (b) SBS-Emissioncharakteristik. Die Intensitätsabhängigkeit der Ionenflugzeitverteilungen und ein dem Plateau ähnlicher He^{2+}/He^{+}-Verlauf unterstützen das. Mechanismus (b) würde demnach durch gleichzeitige Emission der Elektronen in einer abgewandelten Art der direkten Stoßionisation ablaufen, Mechanismus (a) durch RESI und/oder einen doppelt angeregten Zwischenzustand. Da für direkte Stoßionisation das rückstoßende Elektron deutlich mehr Energie benötigt als für die beiden indirekten Mechanismen, fällt der Wirkungsquerschnitt von Mechanismus (b) schneller mit sinkender Intensität ab als der von (a). In beiden Fällen würden aber zwingend mehrere Kollisionen benötigt, um die Energie zur Doppelionisation bereitzustellen. Das ist theoretisch und experimentell auch schon so beobachtet worden und damit kein absolut unglaubwürdiges Szenario (siehe Kap. 2.3.1). So könnte eines der beiden Elektronen als Antenne fungieren (LTR^{+}08) oder die Stöße des Elektrons werden als elektromagnetische Impulse betrachtet (PDT^{+}06). Auch wären klassisch mehrere Stöße möglich (LYL^{+}11).
Das würde jedoch nicht die intensitätsunabhängigen Impulsbeträge $p \neq 0$ für B2B-Emission erklären. Denn Tunnelionisation findet am Maximum des Feldes statt und führt daher zu

Impulsverteilungen um $|p_e| = 0$. Nur Ionisation am Nulldurchgang des Feldes würde zu den in Abb. 5.9 beobachteten Impulsen von $p_z \approx 0,8\ a.u.$ führen. Da sich die Werte des Keldysh-Parameters im nichtadiabatischen Bereich befinden, ist durchaus eine zusätzliche Absorption von Photonen während des Tunnelns denkbar, was auch bei Tunnelionisation am Feldmaximum zu von null verschiedenen Driftimpulsen führen würde. Außerdem wäre das ein möglicher Erklärungsansatz für die Quantisierungsstruktur in Abb. 5.15, die nur bei B2B-Emission auftritt.
Eine weitere Möglichkeit, die besonders durch die Studien über die Auswirkungen der Auswahlregeln wahrscheinlicher wird, ist ein den Freeman-Resonanzen ähnlicher Zwischenzustand. Hierbei wird ein Elektron (e_1) vom Laserfeld ionisiert und sammelt in diesem Energie. Während es sich im Kontinuum befindet, vollführt das Laserfeld mindestens eine halbe Schwingung. Innerhalb dieser Zeit können angeregte Zustände des zurückbleibenden He^+-Ions durch die Kopplung einer ganzen Zahl von Photonen mit dem Grundzustand in Resonanz gebracht werden. Dieser Zwischenzustand müsste nicht zwangsweise ein Rydberg-Zustand sein, der durch die Absorption eines Photons ionisiert werden kann. Beispielsweise wäre auch $n = 2$ denkbar mit einer Energie über dem Grundzustand von etwa $40,8\ eV$. Aus diesem Zwischenzustand wäre nur noch ein feldfreies Ionisationspotential von etwa $13,6\ eV$ zu überwinden. Damit benötigte das Elektron e_1 beim Stoß deutlich weniger Energie und direkte Stoßdoppelionisation sowie eine weitere Anregung des Elektrons e_2 wären möglich. Wie hoch die Wahrscheinlichkeit ist, dass die Resonanz noch vor dem Stoß von e_1 auftritt, ist allerdings nicht trivial abzuschätzen.
Die dargestellten Szenarien sind daher zu diesem Zeitpunkt nur Gedankenspiele und müssen durch aufwändige theoretische Rechnungen unterstützt werden, was im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich war. Die beschriebenen Messungen liefern dennoch neue und aussagekräftige experimentelle Ergebnisse, anhand derer theoretische Modelle überprüft werden können.

5.2. Untersuchungen an Neon

Der Vergleich der Doppelionisation verschiedener atomarer Spezies kann ebenfalls neue Erkenntnisse zutage bringen und ist experimentell bisher mit 400 *nm*-Laserpulsen nicht behandelt. Daher wurde Neon als weiteres Target während der letzten Messreihe (M3) untersucht. Prinzipiell unterscheiden sich die beiden Spezies zum einen nicht nur in der Masse, sondern auch im Ionisationspotential, da die zusätzlichen Elektronen im Grundzustand des Neonatoms auch höherenergetische Orbitale besetzen und damit leichter zu ionisieren sind. Zum anderen sind im Fall von Helium die Anfangszustände der beiden Elektronen, die an Doppelionisation teilnehmen, bekannt. Neutrales Neon besitzt jedoch zehn Elektronen (zwei 1s-, zwei 2s- und sechs 2p-Elektronen). Somit ist der elektronische Endzustand prinzipiell nicht genau bekannt, weshalb bisher in der Literatur auch keine Auswahlregeln für die Doppelionisation formuliert wurden. Was die Auswahlregeln betrifft, sind diese im Fall von Neon nicht mehr so einfach zu formulieren. Denn es ist nicht klar, welchen Spin die emittierten Elektronen tragen und damit ist nicht definiert, welche Austauschsymmetrie für die Impulswellenfunktion vorliegen muss.

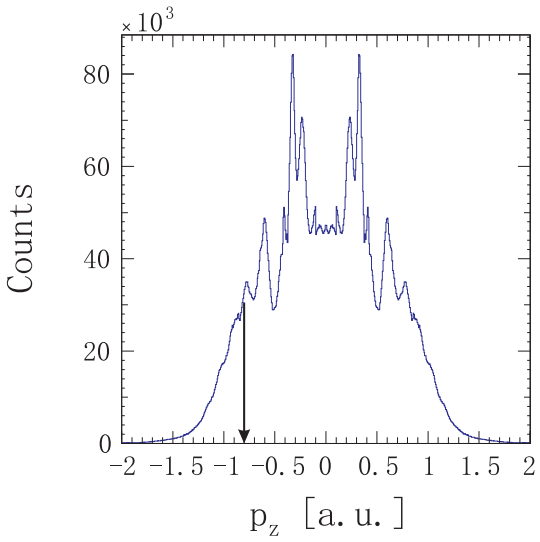


Abbildung 5.31.: z-Impulskomponente des emittierten Elektrons nach Einfachionisation von Neon. Der schwarze Pfeil markiert den Abfall im Wirkungsquerschnitt.

Wie schon in Abb. 2.16 in Kap. 2.4 gesehen, weisen He und Ne stark unterschiedliche Anregungs- und Ionisationsquerschnitte auf, weshalb Unterschiede im Ionisationsmechanismus erwartbar sind.
Im Gegensatz zur Heliummessung stehen im Folgenden nur Daten einer Intensität zur Verfügung. Die Intensitätskalibrierung mit Xenon während dieser Messreihe stellte sich

als sehr ungenau heraus, weshalb die Abschätzung der Laserintensität mit Vorsicht zu behandeln ist. Deshalb wird in Abb. 5.31 erneut die z-Komponente des Impulsspektrums von Elektronen nach Einfachionisation betrachtet. Der beobachtete Abfall lässt auf eine Intensität von etwa $3 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ schließen. Demnach lauten die Keldysh-Parameter für die beiden Ionisationsschritte wie in Tab. 5.5 angegeben. Wieder finden beide Ionisationsschritte im nichtadiabatischen Tunnelregime statt.

$I\ [W/cm^2]$	$U_p\ [eV]$	$\gamma(Ne \to Ne^+)$	$\gamma(Ne^+ \to Ne^{2+})$
$3 \cdot 10^{14}$	$4,8$	1,55	2,13

Tabelle 5.5.: Ponderomotorisches Potential und Keldysh-Parameter in der Neonmessung bei $I = 3 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$.

Auch die Photonenenergie weicht etwas von der weiter oben für die Heliummessung ermittelten ab. Das gemessene Wellenlängenspektrum offenbart eine zentrale Wellenlänge von etwa $\lambda_{zentral} = 396\ nm$ mit $\sigma = 2,3\ nm$. Somit tragen die Photonen entsprechend eine Energie zwischen $3,11\ eV$ und $3,15\ eV$.

5.2.1. Ne^{2+}/Ne^+-Verhältnis

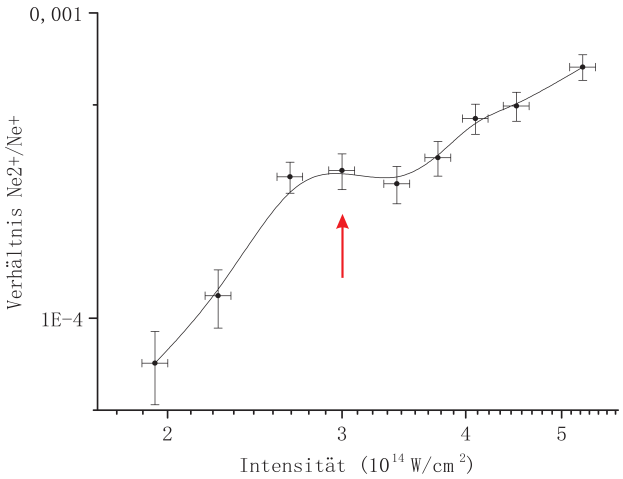


Abbildung 5.32.: Ne^{2+}/Ne^+-Verhältnis nach Ionisation mit 400 nm-Laserpulsen. Die Präzisionsmessung fand bei einer Intensität von $3 \cdot 10^{14} W/cm^2$ statt (roter Pfeil).

Wie schon im Fall von Helium ist auch bei Neon im gemessenen Intensitätsregime eine Struktur in Form eines Plateaus im intensitätsabhängigen Ne^{2+}/Ne^+-Verhältnis zu

erkennen (siehe Abb. 5.32). Die üblichen nichtsequentiellen Mechanismen, direkte Stoßdoppelionisation und Doppelionisation über Stoßanregung, sind jedoch erst bei höheren Intensitäten energetisch erlaubt. Daher handelt es sich beim beobachteten lokalen Maximum wohl nicht um das bekannte Plateau, welches den Übergang von SDI zu NSDI kennzeichnet. Vielmehr könnte ein unbekannter Doppelionisationsmechanismus bei dieser Intensität maximalen Wirkungsquerschnitt aufweisen. Wie in Kap. 2.3.1 berechnet, wäre beispielsweise Doppelionisation über einen doppelt angeregten Zwischenzustand möglich.
In der Literatur findet sich für 800 nm (Larochelle et al. (LAC98)) bei etwa $I = 10^{15}\ W/cm^2$ ein Plateau (siehe Abb. 2.6). Da sich das ponderomotorische Potential mit 800 nm-Pulsen im Vergleich zu 400 nm-Pulsen vervierfacht, befinden sich die Plateaus etwa bei Intensitätsintervallen, die der gleichen maximalen Rückstreuenergie der Elektronen entsprechen und sind diesbezüglich konsistent.
Bei einer Wellenlänge von 400 nm und $I = 1 \cdot 10^{15}\ W/cm^2$ berechnen Hao et al. (HWJL09) ein Doppel- zu Einfachionisationsverhältnis von rund $5 \cdot 10^{-3}$. Extrapoliert man die in der vorliegenden Arbeit gemessenen Verhältnisse zu dieser Intensität, stimmen die Werte etwa überein.

5.2.2. Einfachionisation

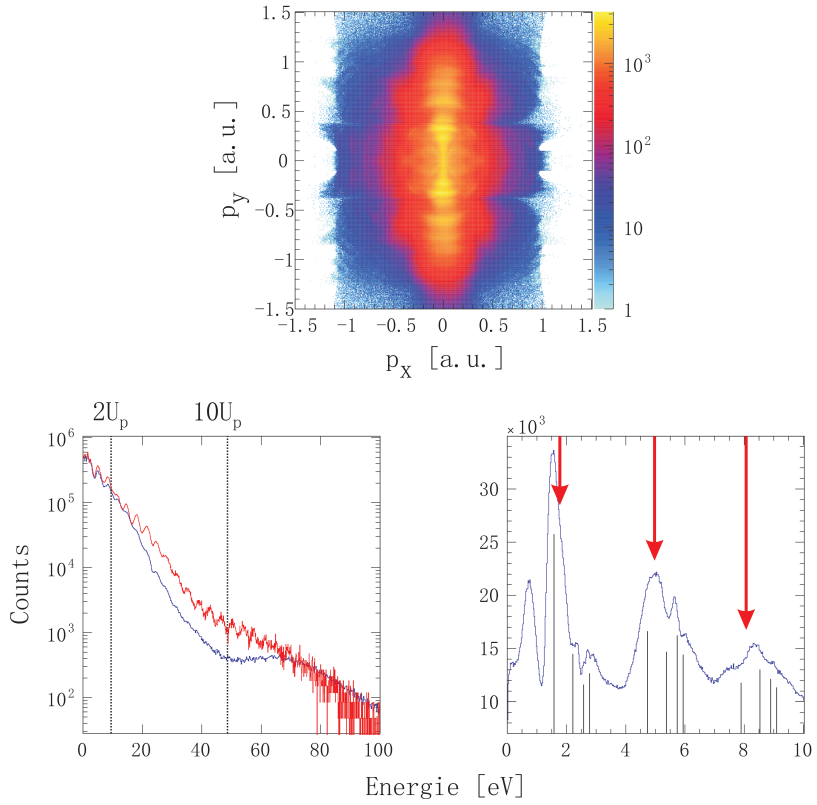


Abbildung 5.33.: Elektronen aus der Einfachionisation von Neon. Oben: Impulsspektrum in der $x-z$-Ebene. Unten links: logarithmisches Energiespektrum bis 100 eV (Neon: schwarz, Helium: rot). Die gestrichelten Linien markieren eine Energie von $2U_p$ bzw. $10U_p$. Unten rechts: Energiespektrum für kleine Energien bis 10 eV. Mit roten Pfeilen sind die berechneten Positionen der ATI-Maxima ohne den Einfluss von Freeman-Resonanzen eingezeichnet. Die schwarzen Striche markieren Kontinuumsenergien von Elektronen nach Ionisation aus Rydberg-Zuständen mit $n = 3, 4, 5, 6$ durch Absorption von $1, 2, 3$ Photonen (siehe Abb. 5.6).

Schon bei der Analyse der Einfachionisation von Neon fallen im Vergleich zur Heliummessung Unterschiede auf (blaue und rote Linie in Abb. 5.33 unten links). Wie in Abb. 5.33 (oben) zu sehen, zeigt das $x-z$-Impulsspektrum nur für kleine Impulsbeträge klare Maxima in Form von konzentrischen Kreisen. Das bestätigen die Energiespektren: Nur bei kleinen Energien sind deutliche ATI-Maxima erkennbar. Allerdings können bei genauerer Betrachtung auch bei höheren Energien angedeutete Maxima ausgemacht werden. Mit der

Annahme, dass diese klassische ATI-Maxima sind und nicht über Freeman-Resonanzen entstehen, wird damit U_p zu $4,2\ eV$ bestimmt.
Somit können über die effektiven Ionisationspotentiale die Positionen der ATI- und ATDI-Maxima berechnet werden. Die effektiven Ionisationspotentiale von Neon lauten bei der verwendeten Intensität von $I = 3 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$ ($U_p \approx 4,2\ eV$)

$$I_{p,Ne^+,eff} = I_{p,Ne} + U_p \approx 25,4\ eV \tag{5.3}$$

sowie

$$I_{p,Ne^{2+},eff} = I_{p,Ne} + U_p + I_{p,Ne^+} + U_p \approx 72,1\ eV \quad . \tag{5.4}$$

Die jeweils ersten Maxima der ATI- bzw. ATDI-Reihen befinden sich nach dieser Rechnung bei $\Delta_{Ein} = 1,8\ eV$ (Einfachionisation, mindestens 9 Photonen) und $\Delta_{Dop} = 3\ eV$ (Doppelionisation, mindestens 24 Photonen). Damit ergeben sich im Fall der Einfachionisation die in Abb. 5.33 (unten rechts) mit roten Pfeilen markierten Positionen der ATI-Maxima. Diese stimmen etwa mit den gemessenen Maxima überein. Jedoch sind letztere teilweise schmal und haben ihren Ursprung daher zumindest bei niedrigen Energien in Freeman-Resonanzen. Identifiziert werden diese mit Hilfe der Annahme, dass die Ionisation aus Rydbergzuständen heraus stattfindet (schwarze Markierungen). Erneut wurden zur vereinfachten Darstellung die Bindungsenergien des Elektrons im Wasserstoffatom verwendet. Wie zu sehen, ist diese Näherung für Neon weniger gut erfüllt als für Helium.
Das lokale Maximum im Elektronenenergiespektrum bei etwa 70 eV wird durch Elektronen erzeugt, die nicht aus der Ionisation von Neon stammen.

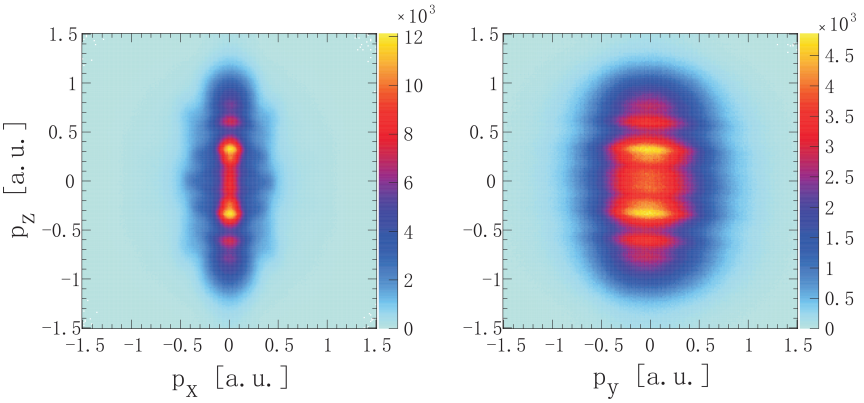


Abbildung 5.34.: Ionenimpulsspektren aus der Einfachionisation in der $x-z$- (links, gleiche Daten wie Abb. 5.33, aber mit linearer Skala) und $y-z$-Ebene (rechts).

Die Neonmessung weist aufgrund des veränderten Speedratios des Jets vor allem in y-Richtung eine deutlich schlechtere Ionenimpulsauflösung auf. Das zeigt Abb. 5.34 mit den Ionenimpulsspektren nach Einfachionisation. Während in der $x-z$-Ebene klare Strukturen erkennbar sind, zeigen sich diese in der $y-z$-Ebene stark verbreitert.

5.2.3. Doppelionisation

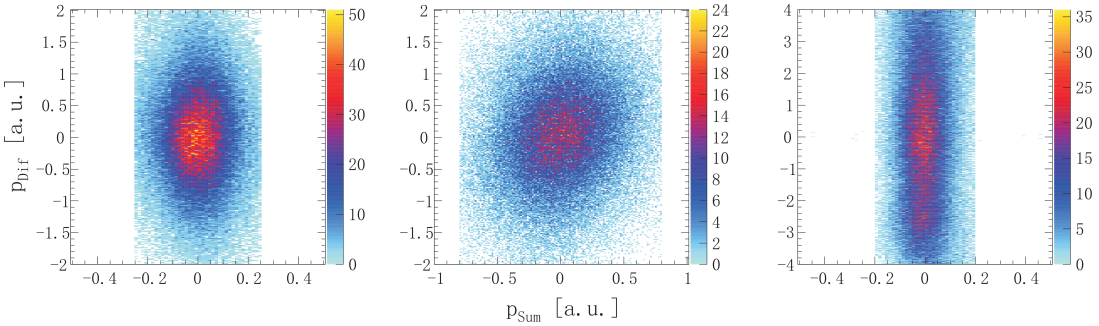


Abbildung 5.35.: Impulserhaltung in der Neon-Doppelionisation. Aufgetragen sind die Impulsdifferenzen aller beteiligter Teilchen ($p_{Ion} - p_{e1} - p_{e2}$) gegen deren Impulssummen ($p_{Ion} + p_{e1} + p_{e2}$). Von links nach rechts: x-, y- und z-Impulskomponente.

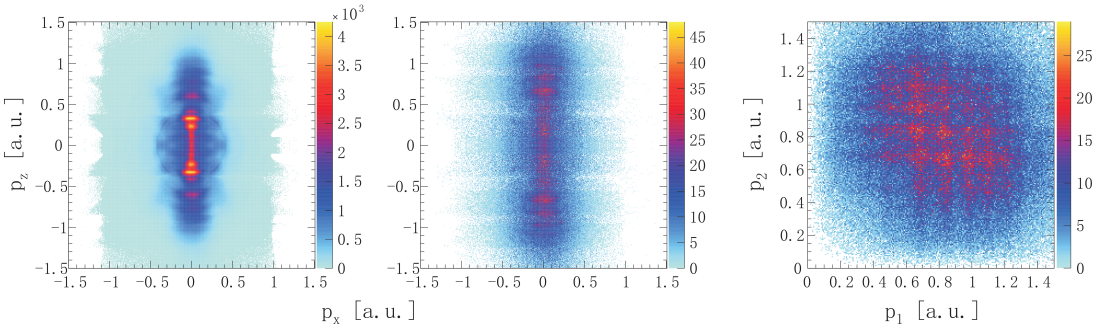


Abbildung 5.36.: Elektronenimpulsverteilungen in der $x-z$-Ebene nach Einfachionisation (links) und Doppelionisation (Mitte) von Neon. Rechts: Korrelierte Impulsverteilung beider Elektronen aus Doppelionisation.

Zunächst sind in Abb. 5.35 die Summenimpulse der drei nach der Neondoppelionisation erzeugten geladenen Teilchen für alle Raumrichtungen zu sehen. Die bereits in der Einfachionisation beobachtete schlechte Ionenimpulsauflösung manifestiert sich hier in der deutlich

breiteren Verteilung der y-Impulskomponente (zu beachten sind die unterschiedlichen Abszissen).
Mit diesem Wissen wird im Folgenden die Doppelionisation von Neon nach ähnlichem Muster wie zuvor die von Helium analysiert. Dazu sind in Abb. 5.36 zunächst die Impulsverteilungen der Elektronen aus Einfachionisation (links) und Doppelionisation (Mitte) gegenübergestellt. Während im ersten Fall Freeman-Resonanzen und durch die vergleichsweise hohe Zählrate scharfe Maxima entlang der Polarisationsrichtung des Lasers erkennbar sind, weisen Elektronen aus Doppelionisationsereignissen etwas breitere, bei höheren Impulsbeträgen befindliche Maxima auf. Diese sind weitaus deutlicher ausgeprägt als im Fall von Helium und bedeuten eine stärkere Energiequantisierung einzelner Elektronen.
In der gleichen Abbildung rechts bestätigt das der Blick auf die korrelierten Impulsbeträge. Während bei Helium noch Viertelkreise (gleiche Impulsbeträge) angedeutet waren, die von einigen Maxima durchzogen wurden, scheinen in diesem Fall Geraden konstanten Elektronenimpulses zu dominieren, die an ihren Schnittstellen zu Maxima führen. Da die Messung wieder nur eine Unterscheidung der Elektronen nach *zuerst gemessen* und *als zweites gemessen* zulässt, wurden beide Elektronenimpulse jeweils einmal als p_1 bzw. p_2 verwendet und das Spektrum somit symmetrisiert. Die beobachtete Struktur legt den Schluss nahe, dass eines der beiden Elektronen (noch ungewiss, ob es das erste oder das zweite emittierte ist) eine starke Energiequantisierung und das andere eine kontinuierliche Energieverteilung aufweist.

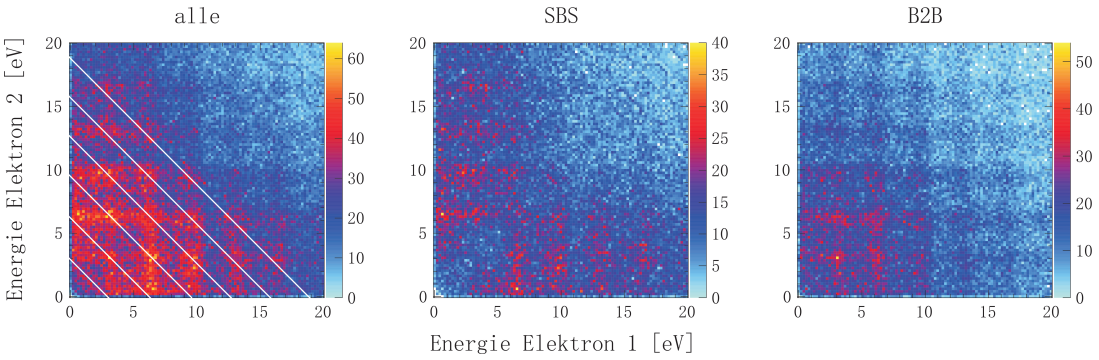


Abbildung 5.37.: Korrelierte Energiespektren beider Elektronen nach Doppelionisation von Neon für alle Elektronen (links), SBS-Emission (Mitte) und B2B-Emission (rechts).

Umgerechnet in Energien ergibt sich aus Abb. 5.36 (rechts) das linke Spektrum in Abb. 5.37. Das im vorigen Abschnitt berechnete effektive Doppelionisationspotential $I_{p,Ne^{2+},eff} \approx 72,1\ eV$ führt rechnerisch zu den eingezeichneten Energieerhaltungsdiagonalen, die jeweils einem Maximum in der Summenenergie entsprechen. Im Rahmen des Fehlers der Intensitätskalibrierung stimmen die Positionen der gemessenen Maxima etwa mit den berechneten Summenenergien überein. Zu jedem dieser Maxima ist in Tab. 5.6 die entsprechende Zahl der absorbierten Photonen aufgelistet.

Energie des Maximums	Anzahl absorbierter Photonen
3 eV	24
6 eV	25
9 eV	26
12,5 eV	27
15,5 eV	28
18,5 eV	29
20 eV	30

Tabelle 5.6.: Anzahl absorbierter Photonen bei der Neondoppelionisation für die Maxima im Summenenergiespektrum (Diagonalen) aus Abb. 5.37 links.

Abb. 5.37 zeigt weiterhin die korrelierten Energiespektren für den Fall von SBS- (Mitte) sowie B2B-Emission (rechts). Anders als in der Heliumdoppelionisation sind bei Neon auch für SBS-Emission Strukturen zu finden, die lediglich auf der Diagonalen unterbrochen sind. Hier liegen jene Ereignisse, bei welchen beide Elektronen mit gleicher Energie in die gleiche Richtung emittiert werden. Dieser Teil des Phasenraums sorgt für einen sehr ähnlichen Auftreffort auf dem Detektor sowie eine ähnliche Flugzeit und ist damit von der Totzeit der Messmethode betroffen.
Offenbar liegt also eine Quantisierung der Energie eines der beiden Elektronen unabhängig von der Emissionskorrelation vor.

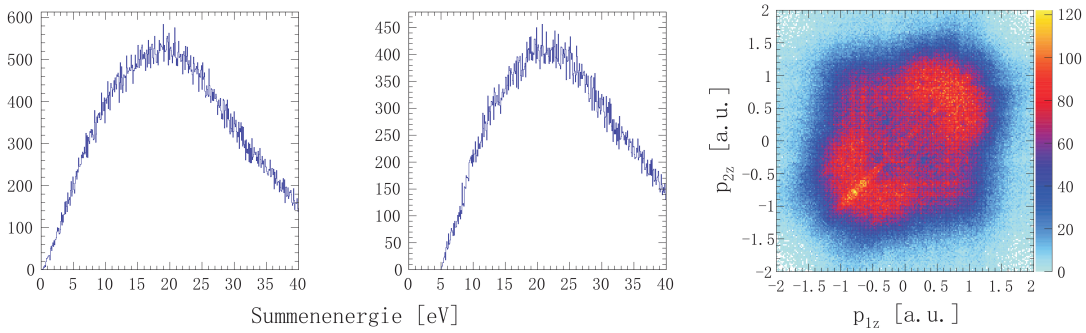


Abbildung 5.38.: Links: Summenenergie beider Elektronen nach Doppelionisation von Neon. Mitte: Summenenergie für Elektronen mit einer Energie von jeweils mehr als $2,5\ eV$. Rechts: Die z-Impulskomponenten der beiden Elektronen in Korrelation. Im rechten Spektrum wurde der Impuls eines der beiden Elektronen über die Impulserhaltung berechnet.

Im nächsten Schritt wird die Summenenergie der Elektronen betrachtet, was einer Projektion von Abb. 5.37 (links) auf deren Diagonale entspricht. Wie bereits mit dem bloßen

Auge zu erkennen, sind jedoch nicht alle Maxima auf den Energieerhaltungsdiagonalen positioniert. Vielmehr liegen solche, die $E_1 \approx 1\ eV$ bzw. $E_2 \approx 1\ eV$ erfüllen, zwischen den Diagonalen. Das scheint nicht verwunderlich, denn auch in der Einfachionisation sowohl von Helium als auch von Neon konnten bei niedrigen Energien solche Strukturen beobachtet werden, die als Freeman-Resonzen identifiziert wurden. In der Summenenergie füllen diese Resonanzen die Zwischenräume zwischen möglichen Maxima auf. Um ihren Einfluss auf die Summenenergie zu untersuchen, sind in Abb. 5.38 links die Summenenergie für alle Elektronenpaare und in der Mitte zusätzlich die für $E_1 > 2,5\ eV$ und gleichzeitig $E_2 > 2,5\ eV$ gezeigt. In beiden Fällen scheinen die sichtbaren Maxima im korrelierten Energiespektrum nicht zu einer Quantisierung der Summenenergie zu führen, was den Verdacht weiter erhärtet, dass nur eines der beiden Elektronen quantisierte Energie trägt und das andere kontinuierliche.
In der gleichen Abbildung rechts sind die korrelierten z-Impulskomponenten der Elektronenpaare aus Doppelionisation zu sehen. Sofort ins Auge fallen zu den Achsen parallele Geraden, die konzentrische Quadrate ausbilden. Diese prägnante Verteilung liegt sowohl für B2B- als auch für SBS-Emission vor, was die Streifenstruktur für beide Fälle in Abb. 5.37 repräsentiert. Überlagert ist eine kontinuierliche Verteilung bei SBS-Emission (erster und dritter Quadrant), die höhere Energien verursacht und auch schon im Fall von Helium beobachtet wurde. Dieser Teil der Zählrate könnte mit einem Rückstreuschritt erklärt werden, der Elektronenpaare bevorzugt SBS emittiert. In einem solchen Fall müsste durch die Gleichzeitigkeit der Emission eine Abstoßung der Elektronen beobachtbar sein. Diese These wird mit Hilfe von Abb. 5.39 untersucht.
Im in der $x-y$-Ebene relativ zum Laborkoordinatensystem gedrehten Koordinatensystem (x repräsentiert nun die Richtung des Impulsvektors des ersten Elektrons) werden die Impulskomponenten des zweiten Elektrons analysiert. Für Elektronenpaare, die in den gleichen z-Halbraum emittiert werden (SBS, in Abb. 5.39 oben rechts), ist senkrecht zur Polarisationsrichtung des Lasers eine Abstoßung erkennbar, die nur durch die Coulomb-Wechselwirkung ausgelöst werden kann. Bei Elektronenpaaren, die in entgegengesetzte z-Halbräume emittiert werden (B2B, in Abb. 5.39 oben links), tritt diese Abstoßung nicht auf.
Vergleicht man Abb. 5.39 unten mit dem gleichen Spektrum für Helium in Abb. 5.17 unten, fällt eine schwächere Abstoßung für Neon auf. Das kann unter anderem damit zusammenhängen, dass bei Helium kein offensichtlicher Mechanismus sowohl SBS- als auch B2B-Phasenräume populiert. Der bei Neon beobachtete Mechanismus erzeugt somit höchstwahrscheinlich nicht nur konzentrische Quadrate in Abb. 5.38 rechts, sondern auch Elektronenpaare, die nicht gleichzeitig emittiert werden.

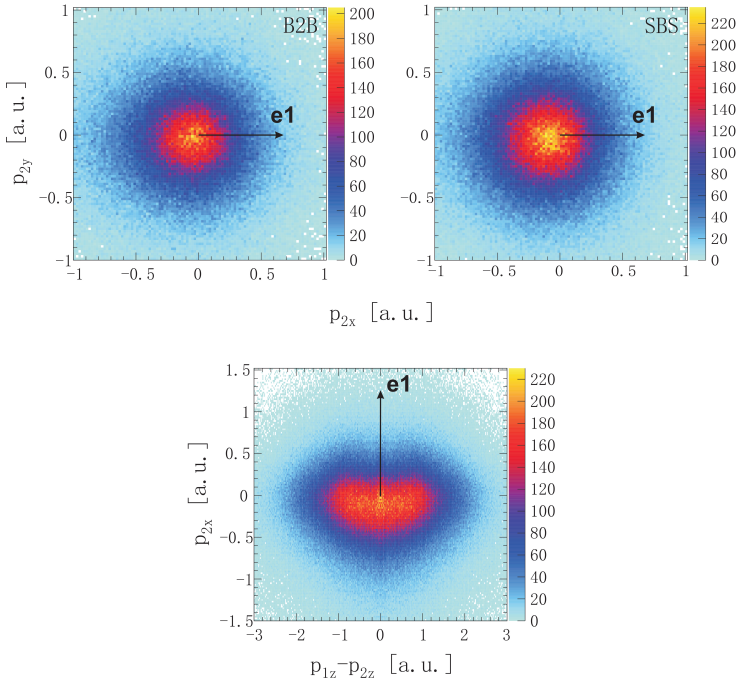


Abbildung 5.39.: Abstoßung der beiden emittierten Elektronen nach Neon-Doppelionisation. Obere Reihe: Impulsverteilung des zweiten Elektrons relativ zum ersten (Pfeil) in der Ebene senkrecht zur Polarisationsrichtung für B2B- (links) und SBS-Emission (rechts). Unten: x-Koordinate der Spektren in der oberen Reihe aufgetragen gegen die Differenz der z-Komponente im Laborkoordinatensystem. Der Impuls eines Elektrons wurde mit Hilfe der Impulse der beiden anderen gemessenen Teilchen rekonstruiert.

Um bei Neon ebenfalls auszuschließen, dass es sich um einen rein sequentiellen Prozess in der untersuchten Doppelionisation handelt, sind in Abb. 5.40 (links) die Elektronenenergien aus Einfachionisation (unten) und Doppelionisation (oben) gegenübergestellt. Wie die eingezeichneten schwarzen Pfeile (Maxima der Elektronenenergie aus Doppelionisation) zeigen, sind die beobachteten Energien nicht mit sequentiellen Schritten erklärbar. Denn in diesem Fall müsste zumindest eines der beiden Elektronen aus Doppelionisation an den gleichen Positionen Energiemaxima aufweisen wie das Elektron aus Einfachionisation.
In der gleichen Abbildung rechts sind die berechneten Positionen der ATI-Maxima nach Ionisation von Ne in Schwarz bzw. von Ne^+ in Rot eingezeichnet. Beide stimmen nicht mit den gemessenen Maxima überein. Daher kann ein einfaches Modell, in dem mindestens eines der Elektronen entweder aus Ne oder Ne^+ unabhängig vom anderen ionisiert wird, ausgeschlossen werden.

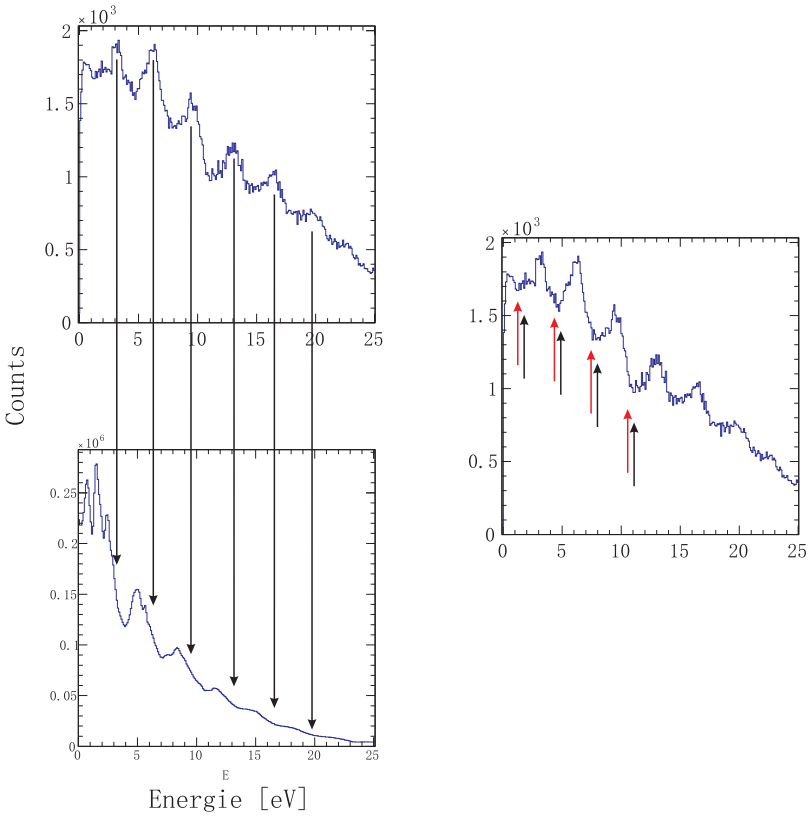


Abbildung 5.40.: Links: Vergleich der Elektronenenergiespektren aus Doppel- (oben) und Einfachionisation (unten). Die Pfeile markieren die Maxima der Doppelionisation. Rechts: Energiepsektrum der Elektronen aus Doppelionisation. Die schwarzen (roten) Pfeile markieren die berechneten Positionen der ATI-Maxima nach Ionisation des Grundzustandes von Ne (Ne^+).

5.2.4. Modellbetrachtung

Wie schon im Fall von Helium kristallisiert sich auch für Neon kein trivialer Doppelionisationsmechanismus heraus. Aus den bisherigen Betrachtungen ist bekannt, dass

- die Mechanismen nichtsequentiell - also mit mindestens einem Rückstreuschritt - ablaufen.
- die Mechanismen aus energetischen Gründen nicht mit einem Rückstreuschritt auskommen - weder für RESI noch für direkte Stoßionisation.
- Mechanismus (M1) sowohl back-to-back- als auch side-by-side-Emission erzeugt und ein anderer (M2) nur side-by-side-Emission.
- Mechanismus (M1) für back-to-back- und side-by-side-Emission eine Quantisierung der Energie eines Elektrons erzeugt, wobei das zweite eine kontinuierliche Energieverteilung aufweist. Ein anderer Mechanismus (M2) erzeugt bei beiden Elektronen kontinuierliche Energieverteilungen.
- beide Elektronen bei Mechanismus (M2) (side-by-side-Emission) nahezu gleichzeitig emittiert werden und sich abstoßen.
- die Summenenergie nicht quantisiert ist.
- Freeman-Resonanzen auch in der Doppelionisation von Neon eine Rolle spielen.

An dieser Stelle lohnt es, die physikalische Interpretation von ATI-Maxima im Tunnelregime zu rekapitulieren. Wie in Abb. 2.3 und dem zugehörigen Text dargestellt, ergeben sich diese Maxima aus einer Interferenz kohärenter Wellenpakete, die zu periodisch wiederkehrenden Zeiten im Puls starten. Eine mögliche Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen nach der Doppelionisation führt quantenmechanisch zu einem kontinuierlichen Austausch von Phase zwischen den beiden Elektronen (WAW$^+$16). Das ändert die Energie der einzelnen Elektronen, erhält aber die Gesamtenergie. Eine solche Wechselwirkung würde somit Maxima in der Summenenergie zulassen, solche im Energiespektrum von einzelnen Elektronen jedoch zerstören.
Das bestärkt die These von zwei verschiedenen Mechanismen, wobei sich einer (M2) durch einen Rückstreuschritt auszeichnet, der fast aussschließlich zu SBS-Emission und keiner Quantisierung der Energien einzelner Elektronen führt. Der andere (M1) darf somit keine nennenswerte Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen beinhalten, da ein ATI-Muster im Energiespektrum und somit zeitliche Interferenz zu sehen ist.
Aus welchen Zuständen heraus oder auf welche Weise die Elektronen emittiert werden, entzieht sich aktuell jedoch jedem Verständnis. Dem Autor ist kein Mechanismus bekannt, der eine atomare Doppelionisation verursacht und dabei zu einer quantisierten Energiestruktur eines Elektrons sowie einer kontinuierlichen des anderen und der Summenenergie führt.

5.2.5. Der Einfluss der Auswahlregeln

Obwohl keine Auswahlregeln für die Doppelionisation von Helium formuliert werden können, die wie im Fall von Helium verschiedene Emissionskonfigurationen ausschließen, sollen hier die gleichen Histogramme betrachtet werden wie im Helium-Fall.

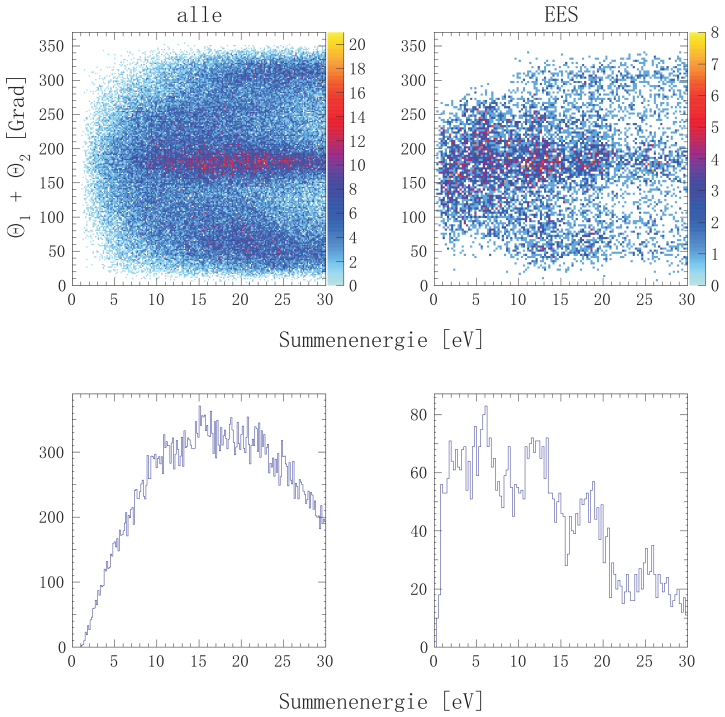


Abbildung 5.41.: Θ-Winkelsumme der emittierten Elektronen nach Doppelionisation von Neon gegen deren Summenenergie. Links oben: alle Elektronen. Rechts oben: Elektronenpaare, deren Energien sich maximal um 1 eV unterscheiden. Darunter sind Projektionen aus dem jeweils darüber liegenden Histogramm zu sehen für $130^o < \Theta_1 + \Theta_2 < 230^o$.

Zunächst wird Auswahlregel (A2) in Abb. 5.41 überprüft. Hier ist die Summe der Emissionswinkel beider Elektronen zur Polarisationsachse gegen die Summenenergie beider Elektronen für alle Elektronenpaare (links oben) sowie nur solche, deren Energien sich um maximal 1 eV unterscheiden (rechts oben, EES), aufgetragen. Analog zum eindimensionalen Summenenergiespektrum (Abb. 5.38) ist im linken Teil ebenfalls keine Quantisierung der Summenenergie sichtbar. Jedoch verschwindet mit der Bedingung für EES (rechts) erneut jedes zweite Maximum, obwohl keine Auswahlregeln definiert werden konnten.

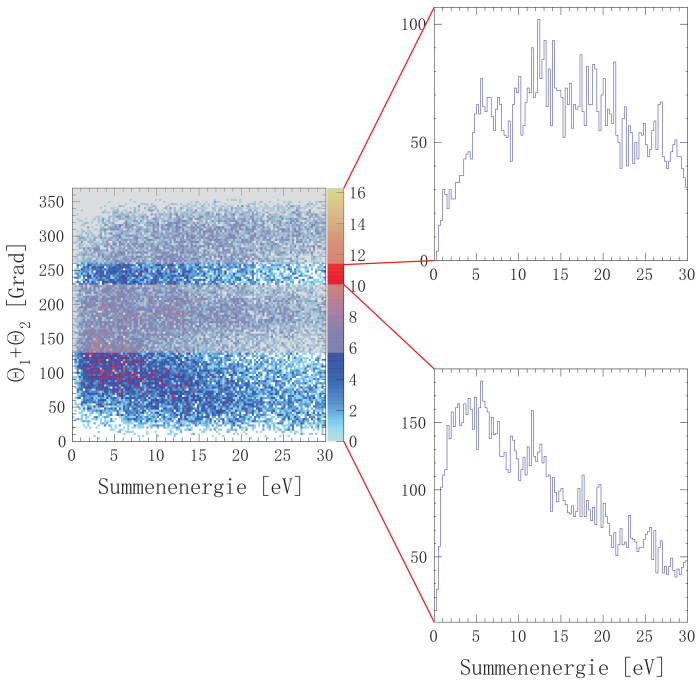


Abbildung 5.42.: Links: Θ-Winkelsumme der emittierten Elektronen gegen deren Summenenergie, wobei einer der beiden Impulsvektoren über die Impulserhaltung berechnet wurde. Rechts: Projektionen aus diesem Histogramm für $\Theta_1 + \Theta_2 = 180^o$ (unten) und $260^o < \Theta_1 + \Theta_2 < 360^o$ (oben).

Indem einer der beiden Impulsvektoren der Elektronen mit Hilfe der Impulserhaltung der beiden anderen Teilchen berechnet wird, können mehr Ereignisse genutzt werden. Durch die deutlich schlechtere Impulsauflösung des Ions in Jetausbreitungsrichtung im Vergleich zur Heliummessung erweist sich ebenso die Energieauflösung dieses berechneten Elektrons als weitaus schlechter. Das ist in Abb. 5.42 auch zu sehen, in der links für diesen Fall nochmals die Winkelsumme der beiden Elektronen gegen deren Summenenergie aufgetragen ist. Die Projektion bei $\Theta_1 + \Theta_2 \approx 180^o$ (unten rechts) zeigt zwar Maxima an den gleichen Positionen wie Abb. 5.41, diese sind jedoch deutlich breiter. Allerdings ist das teilweise auch der Fall, wenn Winkelsummen von $260^o < \Theta_1 + \Theta_2 < 360^o$ betrachtet werden (oben rechts), die explizit nicht zum von den Auswahlregeln betroffenen Phasenraum gehören. Die Ausprägung der Maxima ist zwar deutlich schwächer. Eine fundierte Aussage, dass diese Strukturen tatsächlich durch eine Auswahlregel bedingt sind, lässt sich aber im Gegensatz zur Heliummessung nicht treffen.
Ähnliches gilt für Auswahlregel (A3): In Abb. 5.43 ist jeweils in den mittleren Histogrammen der Winkel zwischen den beiden Impulsvektoren der Elektronen in Abhängigkeit von deren Summenenergie gezeigt. Verwendet man alle Elektronenpaare, erhält man das erwartete Bild (Mitte oben) ohne sichtbare Energiequantisierung. Auch für einen Zwischenwinkel

von 140^o bis 180^o sind keinerlei Strukturen zu erkennen (oben rechts).

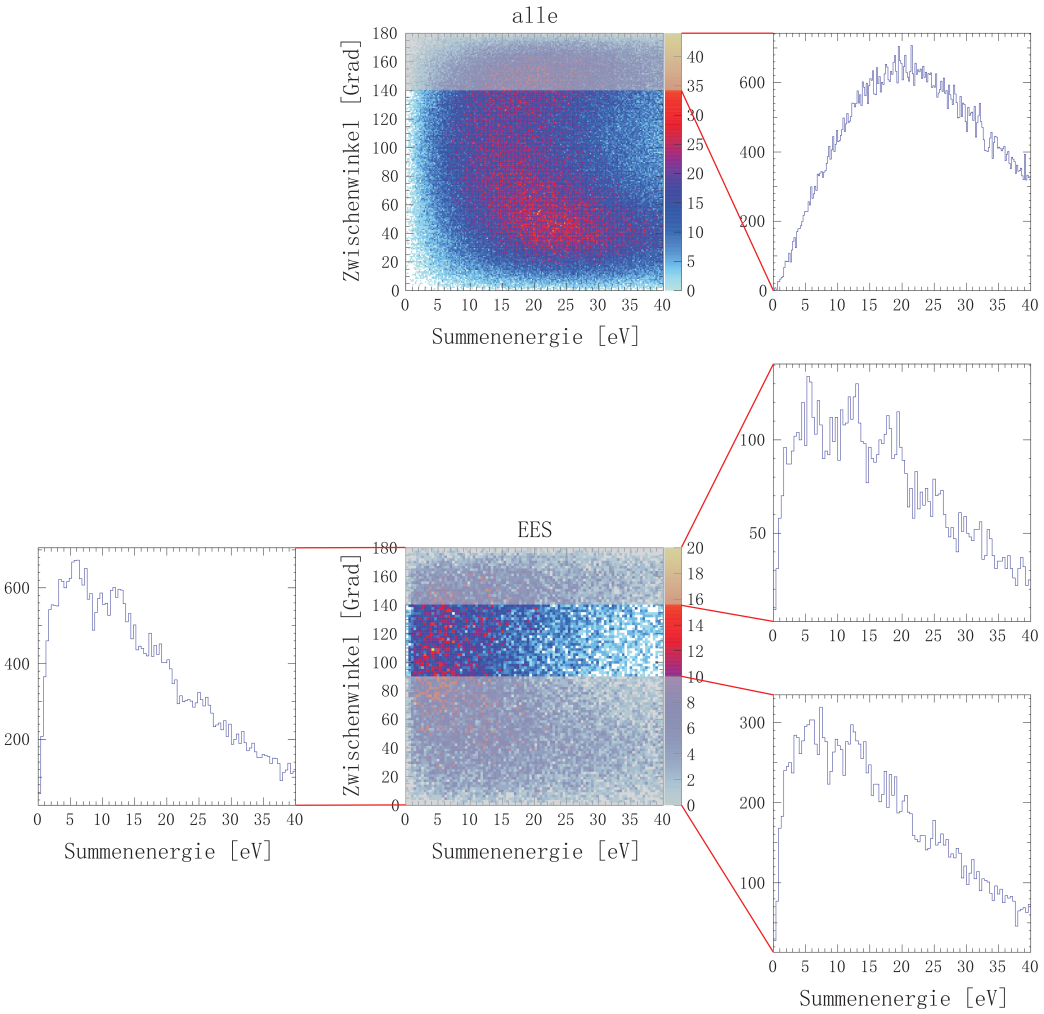


Abbildung 5.43.: In der Mitte oben ist der Zwischenwinkel zwischen den Impulsvektoren beider Elektronen gegen deren Summenenergie dargestellt, rechts daneben eine Projektion dieses Spektrums für Zwischenwinkel von 140^o bis 180^o. In der unteren Reihe ist in der Mitte ebenfalls der Zwischenwinkel gegen die Summenenergie zu sehen, allerdings nur für jene Elektronenpaare, deren Energie sich nicht um mehr als 1 eV unterscheidet. Aus diesem Histogramm sind daneben verschiedene Projektionen auf die Abszisse gezeigt: (links) alle Ereignisse, (rechts Mitte) für Zwischenwinkel von 140^o bis 180^o und (rechts unten) für Zwischenwinkel von 0^o bis 90^o. In allen Fällen wurde der Impuls eines Elektrons über die Impulserhaltung berechnet.

Verlangt man allerdings erneut gleiche Energien für beide Elektronen (EES, Mitte unten), bilden sich Strukturen heraus. Anders als im Fall von Helium sind diese aber sowohl für B2B-Emission (Mitte rechts, Zwischenwinkel 140^o bis 180^o) als auch für SBS-Emission (unten rechts, Zwischenwinkel 0^o bis 90^o) zu erkennen. Es lässt sich sogar sagen, dass sie im gesamten Phasenraum für EES zu finden sind (links unten). Das wiederum widerspricht der Annahme, dass diese Maxima von Auswahlregel (A3) herrühren, obwohl nur jedes zweite Maximum auftritt (6 eV, 13 eV, 19 eV). Vermutlich ist hier wohl eher ein anderer Effekt zu sehen. Beispielsweise könnte der Doppelionisationsmechanismus, der das Streifenmuster im korrelierten Energiespektrum der beiden Elektronen erzeugt, im EES-Phasenraum zu solchen Maxima führen. Oder aber die Auswahlregeln für Neon sind unerwarteterweise deutlich strikter als für Helium und verbieten mehr Fälle. Eine Aussage darüber ist jedoch mit den vorliegenden Daten nicht möglich
Auswahlregel (A1) ist aufgrund fehlender Zählrate erneut nicht überprüfbar.

6. Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit hat zum Ziel, mit Hilfe des seltenen Prozesses der nichtsequentiellen Doppelionisation durch starke Felder Aufschluss über die Natur dieses Prozesses bei vergleichsweise niedrigen Intensitäten zu erhalten und gleichzeitig fundamentale physikalische Gesetze zu überprüfen. Dazu wurden mit Laserpulsen einer zentralen Wellenlänge von 400 nm zunächst Helium bei drei verschiedenen Intensitäten und anschließend Neon bei einer Intensität doppelt ionisiert. Die Ergebnisse dieser Messreihen aus Kap. 5 werden im Folgenden zusammengefasst und anschließend wird ein Ausblick gegeben, welche experimentellen und auch theoretischen Anstrengungen in Zukunft nötig sind, um weitere Erkenntnisse zu erlangen.

6.1. Zusammenfassung

Erstmals wurde im Zuge dieser Arbeit eine COLTRIMS-Apparatur mit Kollimatoren ausgestattet, die die transversale Ausdehnung des Gasstrahls mit Nanometerpräzision verändern können. Dadurch war es möglich, trotz extrem hoher Ionisationsraten zu gewährleisten, dass pro Laserpuls im Mittel weniger als ein Ionisationsereignis stattfindet. Das eröffnete die Möglichkeit, den nur bei hohen Laserintensitäten auftretenden Prozess der Doppelionisation auch an Helium und Neon untersuchen zu können.

Helium

Im ersten Teil dieser Arbeit wurden Laserpulse mit einer Peakintensität von $3{-}5{\cdot}10^{14}\ W/cm^2$ verwendet, um Ionisation an Helium herbeizuführen. In der Einfachionisation konnten Freeman-Resonanzen im Energiespektrum der Elektronen nachgewiesen und identifiziert werden. Bei der Doppelionisation lag der Fokus unter anderem auf der Klärung des dahin führenden Mechanismus, dessen Natur als nichtsequentiell bestätigt werden konnte. Das bedeutet, dass zunächst ein Elektron ionisiert, als quasi-freies Teilchen im Laserfeld beschleunigt und anschließend zum Mutterion zurückgeleitet wird. Was bei und nach dem folgenden Stoß mit diesem Ion passiert, war eine Frage dieser Arbeit. Das Elektron trägt zum Zeitpunkt der Rückkehr zum Ion bei den gewählten experimentellen Parametern nicht genügend Energie, um mit einem einzigen Stoß ein zweites Elektron zu ionisieren und gleichzeitig selbst im Kontiuum zu bleiben. Ebenso wenig reicht die Energie aus, um ein gebundenes Elektron anzuregen und dadurch zu einer höheren Ionisationswahrscheinlichkeit im Laserfeld beizutragen.
Da jedoch einige hunderttausend Doppelionisationsereignisse beobachtet wurden und ein

sequentieller Mechanismus ausgeschlossen werden konnte, müssen andere nichtsequentielle Prozesse eine dominante Rolle spielen. Denkbar wäre Doppelionisation über einen doppelt angeregten Zwischenzustand, wobei das rückstoßende Elektron in einen angeregten gebundenen Zustand eingefangen und die freiwerdende Energie zur Anregung eines zweiten Elektrons verwendet wird. Aus diesem Zwischenzustand können beide angeregten Elektronen im Folgenden mit deutlich erhöhter Wahrscheinlichkeit sequentiell durch das Feld ionisiert werden. Deshalb erwartet man zeitlich versetzt emittierte Elektronen. Ein kleiner Teil der Doppelionisationsrate ist durch die Identifikation eines energiereichen und eines energiearmen Elektrons auf diesen Prozess zurückführbar. Für side-by-side-Emission wurde allerdings eine starke Elektron-Elektron Abstoßung beobachtet, was nicht konsistent mit zwei zumeist nacheinander stattfindenden Ionisationsschritten ist. Für back-to-back-Emission ist außerdem im korrelierten Energiespektrum ein Quantisierungsmuster zu erkennen, welches ebenfalls nicht auf Ionisation aus zwei verschiedenen angeregten Zuständen schließen lässt. Doppelt angeregte Zwischenzustände können also den Großteil der Daten nicht erklären.
Um den Rest der nichtsequentiellen Doppelionisationsrate zu verstehen, können beispielsweise mehrere Stöße des quasi-freien Elektrons mit dem zurückbleibenden Ion in Betracht gezogen werden. Dadurch können in jedem Stoß Energie übertragen und so die kinematischen Grenzen des Rückstreumodells überwunden werden. Gleichzeitig zeigt sich aber wie erwähnt für back-to-back emittierte Elektronenpaare eine ausgeprägte Quantisierungsstruktur. Die Energie jedes einzelnen Elektrons ist dabei quantisiert: Ein energetischer Abstand von jeweils der Photonenenergie ($3\ eV$) tritt zwischen zwei benachbarten Maxima im Energiespektrum auf. Das legt die Vermutung nahe, dass während der Stöße oder während des Ionisationsvorganges beide Elektronen separat nichtadiabatisch Photonen vom Feld absorbieren. Dafür sprechen unter anderem der Wert des Keldysh-Paramters von $\gamma \approx 1$ und die nicht durch beim Feldmaximum auftretende adiabatische Tunnelionisation erklärbaren hohen Impulsbeträge der Elektronen.
Außerdem ist es gelungen, die Energiequantisierung in der Summenenergie der beiden ionisierten Elektronen auch für den Fall von Helium zu zeigen. Mit Hilfe des Vergleichs von Energiespektren bei verschiedenen Intensitäten konnte auch geklärt werden, dass diese bisher aufgrund des Focal Averagings nicht beobachtbar war. Durch die Quantisierung der Summenenergie ist ein Zählen der vom Gesamtsystem absorbierten Zahl der Photonen möglich und damit auch eine Aussage über die Parität des Endzustands. Mit Hilfe dieses Wissens können in dieser Arbeit erstmals theoretisch formulierte Auswahlregeln in der Doppelionisation experimentell in Form von Minima im Wirkungsquerschnitt für präzise festgelegte Phasenraumbereiche nachgewiesen werden. Zu sehen sind beispielsweise ausgeprägte Minima für den Wirkungsquerschnitt von Elektronenpaaren, die nach Absorption einer ungeraden Zahl von Photonen back-to-back emittiert werden und den gleichen Impulsbetrag aufweisen. Damit ist auch in der Mehrphotonenionisation der Einfluss des grundlegenden Pauli-Prinzips auf den differentiellen Wirkungsquerschnitt einer Reaktion und die Impulsverteilungen der emittierten Elektronen nachgewiesen.
Diese Interpretation der Daten ist allerdings nicht für alle gemessenen Intensitäten konsistent. Bei steigender Intensität verschiebt sich das effektive Ionisationspotential durch

den Einfluss des ponderomotorischen Potentials derart, dass mehr Photonen benötigt werden, um beide Elektronen zu emittieren. Somit müssten sich ebenso die von der Zahl der Photonen abhängigen Positionen der durch die Auswahlregeln festgelegten Minima im Energiespektrum zu kleineren Energien verschieben. Dieser Effekt ist aber nicht sichtbar, vielmehr scheinen die Positionen der Minima fest und intensitätsunabhängig zu sein. Erklärbar wäre diese Beobachtung mit einem den Freeman-Resonanzen ähnlichen Prozess in der Doppelionisation. Während ein Elektron quasi-frei im Feld des Lasers beschleunigt wird, könnte das gebundene Elektron mit Hilfe eines AC-Stark-verschobenen resonanten Übergangs angeregt werden und wäre anschließend mit nur einem Stoß des quasi-freien Elektrons direkt ionisierbar oder anregbar. Diese Hypothese ist jedoch mit den vorliegenden Daten nicht belegbar und benötigt unterstützende theoretische Arbeit. Solange der Mechanismus der Doppelionisation nicht geklärt ist, kann die erwähnte Inkonsistenz nicht beseitigt werden. Sollte der Doppelionisationsprozess nicht verantwortlich sein, muss eine der Annahmen, auf Basis derer die Vorhersagen zum Einfluss der Auswahlregeln getroffen wurden, falsch sein. Welche das ist, lässt sich mit den Ergebnissen dieser Arbeit aber ebenfalls nicht zweifelsfrei beantworten.

Neon

Im zweiten Teil wurde die Ionisation des komplexeren Atoms Neon bei einer Intensität von $3{\cdot}10^{14}\ W/cm^2$ untersucht. Wie schon bei Helium konnten die gleichen Freeman-Resonanzen in den Energiespektren der Elektronen aus Einfachionisation gefunden werden. Das ist ein starkes Indiz dafür, dass tatsächlich Rydberg-Zwischenzustände, die für Helium und Neon sehr ähnliche Energieeigenwerte aufweisen, für diesen Effekt verantwortlich sind.
Die Untersuchung der Doppelionisation von Neon zeigte ebenfalls deren zweifellos nichtsequentiellen Charakter. Besonders interessant ist die fehlende Quantisierung der Summenenergie bei gleichzeitiger Quantisierung der Energien der einzelnen Elektronen. Scheinbar trägt eines der beiden Elektronen quantisierte Energie, während das andere eine kontinuierliche Energieverteilung aufweist. Ein Doppelionisationsmechnismus, der das verursacht, ist bisher nicht bekannt. Offensichtlich produziert dieser Mechanismus (M) jedoch sowohl Elektronenpaare, die back-to-back emittiert werden, als auch solche mit side-by-side-Emissionscharakteristik und ist vermutlich ein Hauptgrund für die fehlende Beobachtung der Summenenergiequantisierung. Für side-by-side-Emission wurde wie bei Helium der Einfluss der Elektron-Elektron Abstoßung beobachtet, jedoch deutlich schwächer. Das lässt darauf schließen, dass die Elektronen des Prozesses (M) nicht gleichzeitig emittiert werden. Eine Hypothese für einen Prozess, der die experimentellen Beobachtungen zumindest grob erklären kann, ist an dieser Stelle nicht möglich. Das eröffnet jedoch Möglichkeiten für neue Erkenntnisse, die die Elektron-Elektron Wechselwirkung unter dem Einfluss eines äußeren starken Feldes betreffen.

6.2. Ausblick

Da diese Arbeit die erste ist, die nichtsequentielle Doppelionisation bei 400 nm und vergleichsweise niedrigen Intensitäten hochdifferentiell untersucht, existieren zu den meisten Beobachtungen weder vergleichbare Experimente noch theoretische Arbeiten. An den seltenen Stellen, an welchen ein Vergleich möglich ist, sind die hier vorgestellten Daten zumeist konsistent mit den Ergebnissen der einschlägigen Literatur. Die neuen Erkenntnisse aus dieser Arbeit aber werfen vielfältige Fragen auf, die nicht aus sich selbst heraus beantwortbar sind. Somit wäre es nicht verwunderlich, wenn als Konsequenz aus diesem neuen Wissen zukünftige Arbeiten resultieren, die diese Fragen angehen.
Zum einen scheint der Mechanismus, der zu Doppelionisation führt, bei niedrigen Peakintensitäten der Laserpulse nicht mehr im einfachen Dreischrittmodell erklärbar zu sein. Hier können sowohl klassische als auch semi-klassische und vollständig quantenmechanische Rechnungen mit verschiedenen Modellannahmen mit den vorgestellten Daten verglichen werden und Aufschluss über diesen zum aktuellen Zeitpunkt ungeklärten Prozess geben.
Sollte außerdem nicht der Doppelionisationsmechanismus für die Inkonsistenz bei der Intensitätsabhängigkeit der durch die Auswahlregeln bedingten Minima im Summenenergiespektrum verantwortlich sein, muss experimentell und theoretisch geklärt werden, welche der Annahmen falsch waren. Ist das Konzept des Photons in starken Feldern vielleicht nicht korrekt? Führt die Absorption der Energie, die zur Überwindung des ponderomotorischen Potentials nötig ist, vielleicht nicht zur entsprechenden Paritätsänderung? Gelten die Auswahlregeln in anderer Weise, wenn viele Photonen zur Ionisation benötigt werden? Das alles sind sehr grundlegende und überaus spannende Fragen, die in Zukunft angegangen werden können. Es bedarf mit Sicherheit noch einiger Anstrengung, um weiter Licht ins Dunkel der atomaren nichtsequentiellen Doppelionisation bei niedrigen Laserintensitäten zu bringen.

A. Anhang - Experimentelle Parameter

Zum Überblick sind hier die auch im Text erwähnten experimentellen Parameter der verschiedenen in dieser Arbeit behandelten Messreihen aufgelistet. Einige Parameter haben sich nicht verändert und gelten für alle Messreihen. Dazu gehört unter anderem die Spektrometergeometrie, deren Werte manuell gemessene Längen sind. Für die jeweilige Auswertung mussten diese in der Kalibrierung teilweise verändert werden.

Gültig für alle Messreihen

Photonenquelle	Laser
Wellenlänge	400 nm
Pulsdauer	45 fs
Polarisation	linear in z-Richtung
Beschleunigungsstrecke Ionenseite	$18,2$ cm
Driftstrecke Ionenseite	40 cm
Beschleunigungsstrecke Elektronenseite	$7,8$ cm
Düsendurchmesser	5 μm
Brennweite des fokussierenden Spiegels	60 mm

Messreihe (M1) bei Intensität (I3)

Atomare Spezies	Helium
Datum	21.-25.11.2014
Laserintensität	$5 \cdot 10^{14}$ W/cm^2
Trigger-Rate	450 Hz (Hardwarekoinzidenzverschaltung)
Ionenrate	7 kHz
Elektronenrate	21 kHz
Elektrisches Feld	$2,08$ V/cm
Magnetisches Feld	$7,2$ $Gauss$
Düsentemperatur	30 K
Düsenvordruck	6 bar

Messreihe (M1) bei Intensität (I2)

Atomare Spezies	Helium
Datum	26.-29.11.2014
Laserintensität	$4 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$
Trigger-Rate	250 Hz (Hardwarekoinzidenzverschaltung)
Ionenrate	4 kHz
Elektronenrate	13 kHz
Elektrisches Feld	$2,08\ V/cm$
Magnetisches Feld	$7,2\ Gauss$
Düsentemperatur	30 K
Düsenvordruck	6 bar

Messreihe (M2) bei Intensität (I1)

Atomare Spezies	Helium
Datum	6.-11.05.2015
Laserintensität	$3 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$
Trigger-Rate	350 Hz (Hardwarekoinzidenzverschaltung)
Ionenrate	5 kHz
Elektronenrate	15 kHz
Elektrisches Feld	$1,6\ V/cm$
Magnetisches Feld	$6,3\ Gauss$
Düsentemperatur	30 K
Düsenvordruck	$6,2\ bar$

Messreihe (M3)

Atomare Spezies	Neon
Datum	3.-11.02.2016
Laserintensität	$3 \cdot 10^{14}\ W/cm^2$
Trigger-Rate	130 Hz (Hardwarekoinzidenzverschaltung)
Ionenrate	2 kHz
Elektronenrate	4 kHz
Elektrisches Feld	$1,6\ V/cm$
Magnetisches Feld	$6,15\ Gauss$
Düsentemperatur	125 K
Düsenvordruck	$8,2\ bar$

Literaturverzeichnis

[ACH+08] Alnaser, A. S. ; Comtois, D. ; Hasan, A. T. ; Villeneuve, D. M. ; Kieffer, J.-C. ; Litvinyuk, I. V.: Strong-field Non-sequential double ionization: wavelength dependence of ion momentum ddistribution for neon and argon. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 41 (2008), Nr. 031001

[ADK86] Ammosov, M. V. ; Delone, N. B. ; Krainov, V. P.: Tunnel ionization of complex atoms and of atom ions in an alternating electromagnetic field. In: *Sov. Phys. JETP* 64 (1986), Nr. 6, S. 1191–1194

[APT11] Armstrong, G. S. J. ; Parker, J. S. ; Taylor, K. T.: Double-electron above-threshold ionization resonances as interference phenomena. In: *New Journal of Physics* 13 (2011), Nr. 013024

[BF94] Becker, A. ; Faisal, F. H. M.: Correlated Keldysh-Faisal-Reiss theory of above-threshold double ionization of He in intense laser fields. In: *Physical Review A* 50 (1994), Nr. 4

[BF02] Becker, A. ; Faisal, F. H. M.: S-Matrix Analysis of Coincident Measurement of Two-Electron Energy Distribution for Double Ionization of He in an Intense Laser Field. In: *Physical Review Letters* 89 (2002), Nr. 19

[BGK+02] Becker, W. ; Grasbon, F. ; Kopold, R. ; Milosevic, D.B. ; Paulus, G.G. ; Walther, H.: Above-Threshold Ionization: From Classical Features to Quantum Effects. In: *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics* 48 (2002), S. 35–98

[BS11] Barth, I. ; Smirnova, O.: Nonadiabatic tunneling in circularly polarized laser ffield: Physical picture and calculations. In: *Physical Review A* 84 (2011), Nr. 063415

[BV89] Brusdeylins, J. P. G. Toennis T. G. Toennis ; Vollmer, R.: *XII. Symposion on Molecular Beams, Book of Abstracts.* Perugia, 1989

[BYL+11] Bondar, D. I. ; Yudin, G. L. ; Liu, W.-K. ; Ivanov, M. Y. ; Bandrauk, A. D.: Nonsequential double ionization below laser-intensity threshold: Anticorrelation of electrons witwith excitation of parent ion. In: *Physical Review A* 83 (2011), Nr. 013420

[CFK+12] Camus, N. ; Fischer, B. ; Kremer, M. ; Sharma, V. ; Rudenko, A. ; Bergues, B. ; Kübel, M. ; Johnson, N.G. ; Kling, M. F. ; Pfeifer, T. ; Ullrich, J. ; Moshammer, R.: Attosecond Correlated Dynamics of Two Electrons Passing through a Transition State. In: *Physical Review Letters* 108 (2012), Nr. 073003

[CLD+01] Chaloupka, J. L. ; Lafon, R. ; DiMauro, L. F. ; Agostini, P. ; Kulander, K.: Strong-field double ionization of rare gases. In: *Optics Express* 8 (2001), Nr. 7

[CLFZ00] Chen, J. ; Liu, J. ; Fu, L. B. ; Zheng, W. M.: Interpretation of momentum distribution of recoil ions from laser-induced nonsequential double IoIonization semiclassical rescattering model. In: *Physical Review A* 63 (2000), Nr. 011404

[CLL10] Chen, Z. ; Liang, Y. ; Lin, C. D.: Quantitative rescattering theory of correlated two-electron momentum spectra for strong-field nonsequential double ionization of helium. In: *Physical Review A* 82 (2010), Nr. 063417

[Cor93] Corkum, P. B.: Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization. In: *Physical Review Letters* 71 (1993), Nr. 13, S. 1994–1997

[CZYS15] Chen, Z. ; Zheng, Y. ; Yang, W. ; Song, X.: Numelimit simulation of the double-to-single ionization ration for the helium atom in strong laser fields. In: *Physical Review A* 92 (2015), Nr. 063427

[DK98] Delone, N. B. ; Krainov, V. P.: Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field. In: *Physics - Uspekhi* 41 (1998), Nr. 5, S. 469–485

[DMJ+00] Dörner, R. ; Mergel, V. ; Jagutzki, O. ; Spielberger, L. ; Ullrich, J. ; Moshammer, R. ; Schmidt-Böcking, H.: Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: a 'momentum microscope' to view atom collision dynamics. In: *Physics Reports* 330 (2000), S. 95–192

[DPGG+16] Della Picca, R. ; Gramajo, A. A. ; Garibotti, C. R. ; Lopez, S. D. ; Arbo, D. G.: Nonconstant ponderomotive energy in above-threshold ionization by intense short laser pulses. In: *Physical Review A* 93 (2016), Nr. 023419

[DR06] Diels, J.-C. ; Rudolph, W.: *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. Academic Press, 2006

[DWW+02] Dörner, R. ; Weber, T. ; Weckenbrock, M. ; Staudte, A. ; Hattass, M. ; Moshammer, R. ; Ullrich, J. ; Schmidt-Böcking, H.: Multiple Ionization in Strong Laser Fields. In: *Advances in Atomic and Molecular Physics* 48 (2002), S. 1–34

[ELR+03] Eremina, E. ; Liu, X. ; Rottke, H. ; Sandner, W. ; Dreischuh, A. ; Lindner, F. ; Grasbon, F. ; Paulus, G. G. ; Walther, H. ; Moshammer, R. ; Feuerstein, B. ; Ullrich, J.: Laser-induced non-sequential double ionization investigated at and below the threshold for electron impact ionization. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 36 (2003), S. 3269–3280

[Fai73] Faisal, F. H. M.: Multiple absorption of laser photons by atoms. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 6 (1973), S. L89–L92

[FBM+87] Freeman, R.R. ; Bucksbaum, P.H. ; Milchberg, H. ; Darack, S. ; Schumacher, D. ; Geusic, M. E.: Above-Threshold Ionization with subpicosecond Laser-Pulses. In: *Physical Review Letters* 59 (1987), Nr. 10, S. 1092–1095

[FMU00] Feuerstein, B. ; Moshammer, R. ; Ullrich, J.: Nonsequential multiple ionization in intense laser ppulse: interpretation of ion momentum ddistribution wiwith the classical 'rescattering' model. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 33 (2000), S. L823–L830

[Fro07] Frowein, H.: Titan-Saphir Laser. In: *Optik & Photonik* (2007)

[GG01] Guo, C. ; Gibson, G. N.: Ellipticity effects on single and double ionization of diatomic molecules in strong laser fields. In: *Physical Review A* 63 (2001), Nr. 040701

[Gri11] Grisenti, R.: Vorlesung Atomphysik 2. In: *Goethe-Universität Frankfurt* (2011)

[GSJ+15] Gong, X. ; Song, Q. ; Ju, Q. ; Lin, K. ; Pan, H. ; Ding, J. ; Zeng, H. ; Wu, J.: Channel-Resolved Above-Threshold Double Ionization of Acetylene. In: *Physical Review Letters* 114 (2015), Nr. 163001

[GWVW01] Gillen, G. D. ; Walker, M. a. ; Van Woerkom, L. D.: Enhanced double ionization with circularly polarized light. In: *Physical Review A* 64 (2001), Nr. 043413

[HCL+14] Hao, X. ; Chen, J ; Li, W. ; Wang, B. ; Wang, X. ; Becker, W.: Quantum Effects in Double Ionization of Argon below the Threshold Intensity. In: *Physical Review Letters* 112 (2014), Nr. 073002

[Hen10] Henrichs, Kevin: *Optisch Parametrischer Verstärker*, Goethe-Universität Frankfurt, Bachelorarbeit, 2010

[Hen13] Henrichs, Kevin: *Nachweis der Energiequantisierung in der doppelten Argon-Ionisation*, Goethe-Universität Frankfurt, Masterarbeit, 2013

[HS89] Hauge, E. H. ; Stövneng, J. A.: Tunneling times: a critical review. In: *Reviews of Modern Physics* 61 (1989), Nr. 4, S. 917–936

[HS07] Haan, S. L. ; Smith, Z. S.: Classical explanation for electrons above energy $2U_p$ in strong-field double ionization at 390 nm. In: *Physical Review A* 76 (2007), Nr. 053412

[HSSP08] Haan, S. L. ; Smith, Z. S. ; Shomsky, K. N. ; Plantinga, P.W.: Anticorrelated electrons from weak recollisions in nonsequential double ionization. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 41 (2008), Nr. 211002

[HWJL09] Hao, X. ; Wang, G. ; Jia, X. ; Li, W.: Nonsequential double ionization of Ne in an elliptically polarized intense laser field. In: *Physical Review A* 80 (2009), Nr. 023408

[HWT+13] Henrichs, K. ; Waitz, M. ; Trinter, F. ; Kim, H. ; Menssen, A. ; Gassert, H. ; Sann, H. ; Jahnke, T. ; Wu, J. ; Pitzer, M. ; Richter, M. ; Schöffler, M. S. ; Kunitski, M. ; Dörner, R.: Observation of Electron Energy Discretization in Strong Field Double Ionization. In: *Physical Review Letters* 111 (2013), Nr. 113003

[ISS05] Ivanov, M. ; Spanner, M. ; Smirnova, O.: Anatomy of strong field ionization. In: *Journal of Modern Optics* 52 (2005), Nr. 2-3, S. 165–184

[JCC+02] Jagutzki, O. ; Cerezo, A. ; Czasch, A. ; Dörner, R. ; Hattass, M. ; Mergel, V ; Spillmann, U. ; Ullmann-Pfleger, K. ; Weber, T. ; Schmidt-Böcking, H. ; Smith, G. D. W.: Multiple hit readout of a microchannel plate detector with a three-layer delay-line anode. In: *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 49 (2002), S. 2477–2483

[JFZ+04] Jesus, V. L. B. ; Feuerstein, B. ; Zrost, K. ; Fischer, D. ; Rudenko, A. ; Afaneh, F. ; Schröter, C. D. ; Moshammer, R. ; Ullrich, J.: Atomic structure dependence of nonsequential double ionization of He, Ne and Ar in strong laser pulses. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 37 (2004), S. L161–L167

[Kar14] Karsch, Stefan: High-Intensity Laser-Plasma Interactions. In: *LMU-München* Vorlesung (2014). `https://www.physik.uni-muenchen.de/lehre/vorlesungen/sose_14/high-intensity_laser-plasma_interactions/index.html`

[Kel65] Keldysh, L. V.: Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. In: *Soviet Phys. JETP* 5 (1965), S. 1307–1314

[KMCU13] Kamor, A. ; Mauger, F. ; Chandre, C. ; Uzer, T.: How Key Periodic Orbits Drive Recollisions in a Circularly Polarized Laser Field. In: *Physical Review Letters* 110 (2013), Nr. 253002

[KML09] KMLabs: *Operator's Manual - Wyvern 500/1000^{TM} - Cryogenic Ultrafast Laser Amplifier System.* Version 2.00, August 2009. – Gedruckte Version

[Krü15] Krüger, Mario: *Elliptizitätsabhängigkeit der Freeman-Resonanzen von Argon*, Goethe-Universität Frankfurt, Bachelorarbeit, 2015

[Kuc87] Kuchiev, M. Y.: Atomic Antenna. In: *Sov. Phys.-JETP Lett.* 45 (1987), Nr. 404

[LAC98] Larochelle, S. ; A., Talebpour ; Chin, S. L.: Non-sequential multiple ionization of rare gas atoms in a Ti:Sapphire laser field. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 31 (1998), S. 1201–1214

[LBI+94] Lewenstein, M. ; Balcou, Ph. ; Ivanov, M. Y. ; L'Huillier, A. ; Corkum, P. B.: Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. In: *Physical Review A* 49 (1994), Nr. 3, S. 2117–2132

[LCS+01] Lafon, R. ; Chaloupka, J. L. ; Sheehy, B. ; Paul, P. M. ; Agostini, P. ; Kulander, K. C. ; DiMauro, L. F.: Electron Energy Spectra from Intense Laser Double Ionization of Helium. In: *Physical Review Letters* 86 (2001), Nr. 13

[LGE01] Lein, M. ; Gross, E. K. U. ; Engel, V.: Discrete peaks in above-threshold double-ionization spectra. In: *Physical Review A* 64 (2001), Nr. 023406

[LL10] Liao, Q. ; Lu, P.: Energy correlation in above-threshold nonsequential double ionization at 800 nm. In: *Physical Review A* 82 (2010), Nr. 021403

[LTR+08] Liu, Y. ; Tschuch, S. ; Rudenko, A. ; Dürr, M. ; Siegel, M. ; Morgner, U. ; Moshammer, R. ; Ullrich, J.: Strong-Field Double Ionization of Ar below the Recollision Threshold. In: *Physical Review Letters* 101 (2008), Nr. 053001

[LYL+11] Liu, Y. ; Ye, D. ; Liu, J. ; Rudenko, A. ; Tschuch, S. ; Dürr, M. ; Siegel, M. ; Morgner, U. ; Gong, Q. ; Moshammer, R. ; Ullrich, J.: Electron correlation dynamics of strong-field double ionization of atoms below recollision threshold. In: *Journal of Physics: Conference Series* 276 (2011), Nr. 012004

[Mah07] Maharjan, C. M.: *Momentum imaging studies of electron and ion dynamics in a strong laser field*, Kansas State University, Doktorarbeit, 2007

[MB93] Maulbetsch, F ; Briggs, J. S.: Angular-Distribution Of Electrons Following Double Photoionization. In: *Journal Of Physics B-Atomic Molecular And Optical Physics* 26 (1993), Nr. 11, S. 1679–1696

[MB95] Maulbetsch, F. ; Briggs, J.S.: Selection-Rules For Transitions To 2-electron Continuum States. In: *Journal Of Physics B-Atomic Molecular And Optical Physics* 28 (1995), Nr. 4, S. 551–564

[MCU10] Mauger, F. ; Chandre, C. ; Uzer, T.: Recollision and Correlated Double Ionization with Circularly Polarized Light. In: *Physical Review Letters* 105 (2010), Nr. 083002

[Mec11] Meckel, Moritz: *Laser-Induced Electron Tunneling and Diffraction*, Goethe-Universität Frankfurt, Diss., 2011

[MFS+00] Moshammer, R. ; Feuerstein, B. ; Schmitt, W. ; Dorn, A. ; Schöter, C. D. ; Ullrich, J. ; Rottke, H. ; Trump, C. ; Wittmann, M. ; Korn, G. ; Hoffmann, K. ; Sandner, W.: Momentum Distribution of Ne^{n+} Ions Created by an Intense Ultrahsort Laser Pulse. In: *Physical Review Letters* 84 (2000), Nr. 3

[Mil88] Miller, D.R: Free Jet Sources. In: *Atomic and Molecular Beam Methods* (1988)

[MMF15] Maxwell, A. S. ; Morisson Faria, C. Figueira d.: Quantum interference in time-delayed nonsequential double ionization. In: *Physical Review A* 92 (2015), Nr. 023421

[NCRB12] Ni, H. ; Chen, S. ; Ruiz, C. ; Becker, A.: Selection Rules In The Few-Photon Double Ionization Of The Helium Atom. In: *Journal Of Physics B-Atomic Molecular And Optical Physics* 44 (2012), Nr. 17

[NWVW99] Nandor, M. J. ; Walker, M. A. ; Van Woerkom, L. D.: Detailed comparison of above-threshold-ionization spectra from accurate numerical integrations and high-resolution measurements. In: *Physical Review A* 60 (1999), Nr. 3, S. 1771–1774

[PABT09] Parker, J. S. ; Armstrong, G. S. J. ; Boca, M. ; Taylor, K. T.: From the UV to the static-field limit: rates and scaling laws of intense-field ionization of helium. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 42 (2009), Nr. 134011

[Pau00] Pauly, H.: *Atom, Molecule and Cluster Beams I.* Springer, 2000. – ISBN 3-540-67673-2

[PDT+06] Parker, J. S. ; Doherty, B. J. S. ; Taylor, K. T. ; Schultz, K. D. ; Blaga, C. I. ; DiMauro, L. F.: High-Energy Cutoff in the Spectrum of Strong-Field Nonsequential Double Ionization. In: *Physical Review Letters* 96 (2006), Nr. 133001

[Pit15] Pitzer, M.: Koinzidenzmessungen an chiralen Molekülen: Absolutkonfiguration und Zirkulardichroismus. In: *Dissertation an der Goethe-Universität Frankfurt* (2015), S. 23 ff

[PMDT00] Parker, J. S. ; Moore, L. R. ; Dundas, D. ; Taylor, K. T.: Double ionization of helium at 390 nm. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 33 (2000), Nr. L691-L698

[PMM+01] Parker, J. S. ; Moore, L. R. ; Meharg, K. J. ; Dundas, D. ; Taylor, K. T.: Double-electron above threshold ionization of helium. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 34 (2001), S. L69–L78

[Ran05] Randerson, P.J.: *Fundamental Dynamics in high Intensity Laser Ionisation*, Ohio State University, Doktorarbeit, 2005

[Rei80] Reiss, H. R.: Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system. In: *Physical Review A* 22 (1980), Nr. 5, S. 1786–1813

[REZ+08] Rudenko, A. ; Ergler, T. ; Zrost, K. ; Feuerstein, B. ; Jesus, V. L. B. ; Schröter, C. D. ; Moshammer, R. ; Ullrich, J.: Intensity-dependent transitions between different pathways of strong-field double ionization. In: *Physical Review A* 78 (2008), Nr. 015403

[Ric16] Richter, M.: *Ionisation in Zwei-Farben-Laserfeldern: Steuerung von Elektronenwellenpaketen*, Goethe-Universität Frankfurt, Dissertation, 2016

[RJE+07] Rudenko, A. ; Jesus, V. L. B. ; Ergler, T. ; Zrost, K. ; Feuerstein, B. ; Schröter, C. D. ; Moshammer, R. ; Ullrich, J.: Correlated Two-Electron Momentum Spectra for Strong-Field Nonsequential Double Ionization of He at 800 nm. In: *Physical Review Letters* 99 (2007), Nr. 263003

[Rot00] Roth, Matthias: *Aufbau eines nichtkollinear gepumpten optisch parametrischen Verstärkers*, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Diplom-Arbeit, 2000

[San15] Sann, Hendrik: *Elektronenemission aus dissoziierenden Molekülen*, Goethe-Universität Frankfurt, Dissertation, 2015

[SBMD+99] Schmidt-Böcking, H. ; Mergel, V. ; Dörner, R. ; Brauning, H. ; Achler, M. ; Spielberger, L. ; Jagutzki, O. ; Weber, T. ; Khayyat, K. ; Ullrich, J. ; Cocke, C.L. ; Prior, M.H. ; Azuma, Y. ; Awaya, Y. ; Kambara, T.: Cold Target Helium Recoil Ion Momentum Imaging: Understanding Correlated Electron Motion In The Double Ionisation Process. In: *Australian Journal Of Physics* 52 (1999), Nr. 3, S. 523–535

[Sch00] Schmidt, Lothar: *Effekte molekularer Symmetrien in der Elektronenemission bei langsamen He^{2+} - He - Stössen: Eine kinematisch vollständige experimentelle Untersuchung*, Goethe-Universität Frankfurt, Dissertation, 2000

[Sch06] Schöffler, Markus: *Grundzustandskorrelationen und dynamische Prozesse untersucht in Ion-Helium-Stößen*, Goethe-Universität Frankfurt, Dissertation, 2006

[Scr11] Scrinzi, A.: *Vorlesungsskript: "Attophysics Theory"*. `https://www.physik.uni-muenchen.de/lehre/vorlesungen/wise_11_12/attophysics_theory/script/attophysics.pdf`. Version: 2011. – Gesehen am 02.03.2016

[SH89] Stövneng, J. A. ; Hauge, E.H.: The Büttiker-Landauer Model Generalized. In: *Journal of Statistical Physics* 57 (1989), Nr. 3/4, S. 841–863

[SKES93] Schwarzkopf, O. ; Krässig, B. ; Elmiger, J. ; Schmidt, V.: Energy- and Angle-Resolved Double Photoionization in Helium. In: *Physical Review Letters* 70 (1993), Nr. 3008

[SLW+98] Sheehy, B. ; Lafon, R. ; Widmer, M. ; Walker, B. ; DiMauro, L. F.: Single- and multiple-electron dynamics in the strong-field tunneling limit. In: *Physical Review A* 58 (1998), Nr. 5

[SNMF10] Shaaran, T. ; Nygren, M. T. ; Morisson Faria, C. Figueira d.: Laser-induced nonsequential double ionization at and above the recollision-excitation-tunneling threshold. In: *Physical Review A* 81 (2010), Nr. 063413

[SRS+07] Staudte, A. ; Ruiz, C. ; Schöffler, M. ; Schössler, S. ; Zeidler, D. ; Weber, Th. ; Meckel, M. ; Villeneuve, D. M. ; Corkum, P. B. ; Becker, A. ; Dörner, R.: Binary and Recoil Collisions in Strong Field Double Ionization of Helium. In: *Physical Review Letters* 99 (2007), Nr. 263002

[Tho10] Thomson, M.: Vorlesung Laser- und Optoelektronik. In: *Goethe-Universität Frankfurt* (2010)

[Ulr11] Ulrich, Birte: *Argon- und Neon-Dimere und Trimere in intensiven Laserfeldern*, Goethe Universität Frankfurt, Doktorarbeit, 2011

[UMD+03] Ullrich, J. ; Moshammer, R. ; Dorn, A. ; Dörner, R. ; Schmidt, L. Ph. H. ; Schmidt-Böcking, H.: Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes. In: *Reports on Progress in Physics* 66 (2003), Nr. 9, S. 1463

[Vac08] Vacuum, Pfeiffer: *The Vacuum Technology Book*. 2008

[WAW+16] Waitz, M. ; Aslitürk, D. ; Wechselberger, N. ; Gill, H. K. ; Rist, J. ; Wiegandt, F. ; Goihl, C. ; Kastirke, G. ; Weller, M. ; Bauer, T. ; Metz, D. ; Sturm, F. P. ; Voigtsberger, J. ; Zeller, S. ; Trinter, F. ; Schiwietz, G. ; Weber, T. ; Willliams, J. B. ; Schöffler, M. S.

; Schmidt, L. Ph. H. ; Jahnke, T. ; Dörner, R.: Electron Localization in Dissociationg H_2^+ by Retroaction of a Photoelectron onto Its Source. In: *Physical Review Letters* 116 (2016), Nr. 043001

[Web03] Weber, Thorsten: *Untersuchung der verschränkten Bewegung freier Elektronenpaare emittiert aus Ein- und Zweizentren Coulomb-Potentialen in Photoabsorptionsprozessen*, Goethe-Universität Frankfurt, Dissertation, 2003

[WHC+01] Weckenbrock, M. ; Hattass, M. ; Czasch, A. ; Jagutzki, O. ; Schmidt, L. ; Weber, T. ; Roskos, T. ; Löffler, T. ; Thomson, M. ; Dörner, R.: Experimental evidence for electron repulsion in multiphoton double ionization. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 34 (2001), S. L449–L455

[Wik16] Wikipedia: *Online Wikipedia-Artikel zu Doppelbrechung*. `https://de.wikipedia.org/wiki/Doppelbrechung#/media/File:Indexellipsoid.png`. Version: April 2016. – Gesehen am 19.04.2016

[WSD+94] Walker, B. ; Sheehy, B. ; Dimauro, L.F. ; Agostini, P. ; Schafer, K.J. ; Kulander, K.C.: Precision-Measurement Of Strong-Field Double-Ionization Of Helium. In: *Physical Review Letters* 73 (1994), Nr. 9, S. 1227–1230

[WWS+00] Weber, Th. ; Weckenbrock, M. ; Staudte, A. ; Spielberger, L. ; Jagutzki, O. ; Mergel, V. ; Afaneh, F. ; Urbasch, G. ; Vollmer, M. ; Giessen, H. ; Dörner, R.: Recoil-Ion Momentum Distribution for Single and Double Ionization of Helium in Strong Laser Fields. In: *Physical Review Letters* 84 (2000), Nr. 3

[WZS+04] Weckenbrock, M. ; Zeidler, D. ; Staudte, A. ; Weber, Th. ; Schöffler, M. ; Meckel, M. ; Kammer, S. ; Smolarski, M. ; Jagutzki, O. ; Bhardwaj, V. R. ; Rayner, D. M. ; Villeneuve, D. M. ; Corkum, P. B. ; Dörner, R.: Fully Differential Rates for Femtosecond Multiphoton Double IoIonization Neon. In: *Physical Review Letters* 92 (2004), Nr. 21

[YI01] Yudin, G. L. ; Ivanov, M. Y.: Nonadiabatic tunnel ionization: Looking inside a laser cycle. In: *Physical Review A* 64 (2001), Nr. 013409

[YL10] Ye, D.F. ; Liu, J.: Strong-field double ionization at the transition to below the recollision threshold. In: *Physical Review A* 81 (2010), Nr. 043402

[Zie15] Zielinksi, Alejandro: *Fully Differential Photo-Electron Spectra of Hydrogen and Helium Atoms*, LMU München, Doktorarbeit, 2015

[ZLL09] Zhou, Y. ; Liao, Q. ; Lu, P.: Mechanism for high-energy electrons in nonsequential double ionization below the recollision-excitation threshold. In: *Physical Review A* 80 (2009), Nr. 023412

[ZMS16] Zielinksi, A. ; Majety, V. P. ; Scrinzi, A.: Double photoelectron momentum spectra of helium at infrared wavelength. In: *Physical Review A* 93 (2016), Nr. 023406

[ZRE+06] Zrost, K. ; Rudenko, A. ; Ergler, Th. ; Feuerstein, B. ; Jesus, V. L. B. ; Schröter, C. D. ; Moshammer, R. ; Ullrich, J.: Multiple ionization of Ne and Ar by intense 25 fs laser pulses: few-electron dynamics studied with ion momentum spectroscopy. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 39 (2006), S. S371–S380

[ZZBW15] Zhang, Z. ; Zhang, J. ; Bai, L. ; Wang, X.: Transitions of correlated-electron emission in nonsequential double ionization of Ar atoms. In: *Optics Express* 23 (2015), Nr. 6

Danksagung

Nach mehreren Jahren intensiver experimenteller Arbeit und natürlich auch physikalischer Diskussion ist dieses Werk nun vollbracht. Dass ich der einzige Nutznießer dessen bin, trägt keinesfalls dem Fakt Rechnung, dass ich diese Arbeit ohne die Hilfe vieler Personen nicht in der Art hätte schaffen können. Die Kürze dieses Kapitels und die Position in der Arbeit drücken meine Dankbarkeit nicht mal in Entferntesten aus. Eigentlich müsste jeder Leser zunächst hier anfangen, um zu wissen, dass ich nicht der einzige Beteiligte war. Ein riesiges „DANKESCHÖN!“ geht daher an jeden einzelnen der weiteren Beteiligten:

Reinhard Dörner An erster Stelle: mein Doktorvater. Ich glaube, dass ich mich nicht für eine Promotion entschieden hätte, wenn ich nicht schon meine Bachelor- und Masterarbeit in deiner Gruppe hätte anfertigen dürfen. Neben deiner Fähigkeit, dich blitzschnell auf das - jeweils sehr spezifische - Thema deines Gesprächspartners einzulassen und sofort Interesse zu zeigen, was bei einer Gruppe von über 40 Studenten und Doktoranden eine unerklärliche Leistung ist, prägst du eine einzigartige Gruppenstimmung. Denn nicht nur Physik ist wichtig sondern auch das menschliche Miteinander. Und statt unnötigen Druck aufzubauen, gelingt es dir spielerisch und authentisch, zu motivieren und Spaß an der Physik zu vermitteln.

Till Jahnke Auch bei dir weiß ich oft nicht, wie du all das, was du tust, so locker unter einen Hut bekommst. Du bist bei physikalischen, programmiertechnischen und auch sehr fachfremden Fragen immer einer der ersten Ansprechpartner. „Alles wird gut“ stimmt dann auch tatsächlich.

Maksim Kunitski Nicht nur, aber vor allem wegen deiner Fähigkeiten und deines Wissens über unsere Lasersysteme bist du in viele Arbeiten involviert. Und trotzdem hast du immer ein offenes Ohr und nimmst dir die Zeit, interessiert nachzufragen oder selbst Fragen zu beantworten. Für die Bereitstellung des Lasers kann ich dir gar nicht genug danken und auch bei experimentspezifischen Problemen warst du immer da.

Markus Schöffler Deine absolut hilfsbereite und inspirierende Art waren nicht nur als Betreuer meiner Masterarbeit verdammt wichtig sondern auch während meiner Promotion. Bei COLTRIMS-Fragen aller Art bist du prinzipiell der erste Ansprechpartner, der sich auch um Kleinigkeiten gerne kümmert und immer die richtige Antwort parat hat.

Lothar Schmidt Auch du hast einfach Fähigkeiten, die man so oft nicht findet. Unter anderem hast du zu jedem Thema, so ausdiskutiert es auch ist und so abgeschlossen

es auch scheinen mag, noch neue Ideen und Anregungen. Aber natürlich bist du auch die letzte Instanz, wenn alle anderen bei experimentellen Problemen an ihre Grenzen kommen. Dann weißt du einen Ausweg.

Achim Czasch und Klaus Ullman-Pfleger Alle Computerprobleme, die ich nicht selbst oder mit Hilfe anderer Doktoranden gelöst bekam, habt ihr dann hinbekommen. Vielen Dank für die Beschleunigung um Wochen und Monate, die das für mich bedeutet hat!

Mein Büro Immer da waren Christoph und Hendrik (okay, fast...). Es war schön, in so einer entspannten und freundschaftlichen Atmosphäre arbeiten zu dürfen und auch über andere Themen als Physik (BVB>FCB, Tetris>Mittagspause) reden zu können. Außerdem muss ich dir, Hendrik, besonders für deine Geduld bei meinen C++ und anderen Programmierproblemen danken. Auch Jasper, Alina, Yen, Huipeng, Fabian, Adrian und Derya waren zwar nur vorrübergehende aber dennoch sehr angenehme Büroinsassen. Und natürlich Sven, du hättest, wenn es nach mir gegangen wäre, auch schon direkt mit Physik anfangen und früher herkommen dürfen :)

„Meine“ Studenten Mario Krüger, Nikolai Schlott und Fabian Klima: Es war echt sehr inspirierend zu sehen, wie ihr innerhalb der Zeit einer Bachelorarbeit von Neulingen zu Profis geworden seid, super Ergebnisse produziert und obendrauf noch bei der Umsetzung meiner Messungen geholfen habt.

Horst Schmidt-Böcking und die gesamte Arbeitsgruppe Horst, du hast den Grundstein für diese Gruppe gelegt und sicherlich einen großen Anteil daran, wie gut sie heute harmoniert und arbeitet. Aber auch jedes einzelne Mitglied trägt dazu bei, dass wir regelmäßig sehr gute Ergebnisse produzieren und wie eine große Familie funktionieren. Danke!

Die Werkstätten Ohne eure Arbeit wären Bauteile nicht exakt oder schnell genug angefertigt worden oder das Experiment einfach gescheitert.

Meine Familie und Freunde Nicht zu vergessen ist natürlich die vielzitierte „Regeneration“ oder das „Abschalten“ vom Stress. Das wäre nicht möglich gewesen ohne die ständige Unterstützung meiner Familie und den Spaß in der Freizeit mit meinen Freunden. Danke!

Lebenslauf

Kevin Henrichs
*24.07.1987 in Halle (Saale)



Bildungsweg

1998-2007	Gymnasium Ernst-Ludwig-Schule in Bad Nauheim
2007	Abitur: 1,0 (sehr gut)
2007-2010	Studium der Physik an der Goethe-Universität in Frankfurt am Main
2010	Bachelor of Science: 1,5 (sehr gut)
2010-2013	Studium der Physik an der Goethe-Universität in Frankfurt am Main
2013	Master of Science: 1,0 (mit Auszeichnung)
05/2013	Anstellung als wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Goethe-Universität in Frankfurt am Main

Stipendien

2011-2013	Stipendium der Studienstiftung des deutschen Volkes
03/2014-02/2017	Promotionsstipendium der Studienstiftung des deutschen Volkes

Forschungsaufenthalte

04/2010-07/2010	Forschungsaufenthalt im Zuge der Bachelorarbeit an der Kansas State University in Manhattan, Kansas, USA
02/2013-05/2013	Forschungsaufenthalt am Centre for Quantum Technology an der National University of Singapore, Singapur
10/2013	Synchrotron SOLEIL, Gif-sur-Yvette, Frankreich
01/2014	Berliner Elektronen-Synchrotron (BESSY) in Berlin
03/2014	Advanced Light Source (ALS) in Berkeley, USA
01/2015	BESSY, Berlin
06/2016	BESSY, Berlin

Konferenzteilnahmen

07/2012	Nobelpreisträgertagung in Lindau
04/2015	DPG Frühjahrstagung in Heidelberg
07/2015	ATTO 2015 in Saint-Saveur, Kanada
09/2016	ECAMP 2016 in Frankfurt

Akademische Lehrer (Auswahl)

Prof. Dr. R. Dörner
Prof. Dr. J. A. Maruhn
Prof. Dr. H. Roskos
Prof. Dr. W. Hofstetter
Prof. Dr. R. Valenti
PD Dr. T. Jahnke
Dr. Z. Chang
PD Dr. R. Grisenti
Prof. Dr. H. Schmidt-Böcking
Prof. Dr. T. Boller
Prof. Dr. U. Ratzinger
Prof. Dr. J. Stroth
Dr. M. Thomson
Prof. Dr. J. Baumeister
Prof. Dr. J. Weidmann

Veröffentlichungen des Autors

- **Kevin Henrichs**, Markus Waitz, Florian Trinter, Hong-Keun Kim, Adrian Messen, Helena Gassert, Hendrik Sann, Till Jahnke, Jian Wu, Martin Pitzer, Martin Richter, Markus Schöffler, Maksim Kunitski, Reinhard Dörner. *Observation of Electron Energy Discretization in Strong Field Double Ionization*, Physical Review Letters, Vol. **111**, No. 6, 113003 (2013)

- Martin Pitzer, Gregor Kastirke, Maksim Kunitski, Till Jahnke, Tobias Bauer, Christoph Goihl, Florian Trinter, Carl Schober, **Kevin Henrichs**, Jasper Becht, Stefan Zeller, Helena Gassert, Markus Waitz, Andreas Kuhlins, Hendrik Sann, Felix Sturm, Florian Wiegandt, Robert Wallauer, Lothar Schmidt, Allan Johnson, Manuel Mazenauer, Benjamin Spenger, Sabrina Marquardt, Sebastian Marquardt, Horst Schmidt-Böcking, Jürgen Stohner, Reinhard Dörner, Markus Schöffler, Robert Berger. *Absolute Configuration from Different Multifragmentation Pathways in Light-Induced Coulomb Explosion Imaging*, ChemPhysChem, Vol. **17**, No. 16, Pages 2465-2472 (2016)

- Sebastian Eckart, Martin Richter, Maksim Kunitski, Alexander Hartung, Jonas Rist, **Kevin Henrichs**, Nikolai Schlott, Huipeng Kang, Tobias Bauer, Hendrik Sann, Lothar Schmidt, Markus Schöffler, Till Jahnke, Reinhard Dörner. *Non-Sequential Double Ionization by Counter Rotating Circularly Polarized Two-Color Laser Fields*, Physical Review Letters, Vol. **117**, No. 13, 133202 (2016)

- Alexander Hartung, Felipe Morales, Maksim Kunitski, **Kevin Henrichs**, Alina Laucke, Martin Richter, Till Jahnke, Anton Kalinin, Markus Schöffler, Lothar Schmidt, Misha Ivanov, Olga Smirnova, Reinhard Dörner. *Electron spin polarization in strong-field ionization of xenon atoms*, Nature Photonics, Vol. **10**, No. 8, Pages 526-528 (2016)