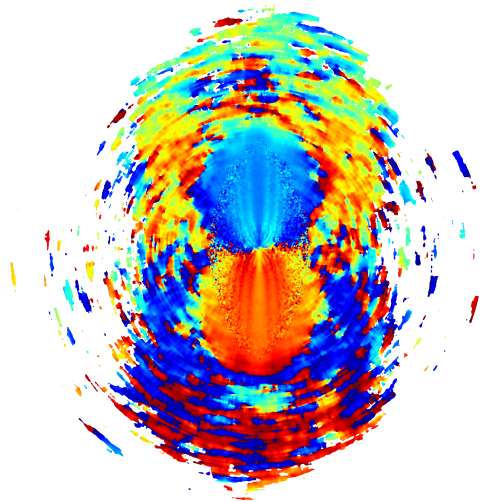


FRIEDRICH-SCHILLER-UNIVERSITÄT JENA

**Untersuchung und Simulation der Ionisations-  
und Streudynamik von Photoelektronen  
mithilfe von Zwei-Farben-Feldern**



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

vorgelegt dem Rat der Physikalisch-Astronomischen Fakultät  
der Friedrich-Schiller-Universität Jena  
von M. Sc. Daniel Würzler  
geboren am 21.10.1987 in Kassel

1. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Gerhard G. Paulus  
Friedrich-Schiller-Universität Jena
2. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Stefanie Gräfe  
Friedrich-Schiller-Universität Jena
3. Gutachter: Dr. techn. habil. Markus Kitzler-Zeiler  
Technische Universität Wien

Tag der Disputation: 13. September 2019

# Inhaltsverzeichnis

<b>Kurzfassung</b>	<b>3</b>
<b>Abstract</b>	<b>4</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>5</b>
<b>2 Grundlagen der Starkfeld-Laserphysik</b>	<b>8</b>
2.1 Drei-Stufen-Modell . . . . .	9
2.2 Elastische Streuung . . . . .	18
2.3 Mathematische Beschreibung von Femtosekunden-Laserpulsen . . . . .	23
<b>3 Erweiterte semiklassische Simulation von Photoelektronenspektren</b>	<b>26</b>
3.1 Struktur der Simulation . . . . .	27
3.2 Berechnung der Feldvektoren . . . . .	29
3.3 Gestreute Elektronen . . . . .	33
3.4 Direkte Elektronen . . . . .	38
3.5 Strukturen der Photoelektronenverteilungen . . . . .	39
<b>4 Versuchsaufbau und Messmethoden</b>	<b>45</b>
4.1 Erzeugung und Kontrolle von Zwei-Farben-Feldern . . . . .	45
4.2 Detektion der Elektronenimpulsverteilung . . . . .	51
4.3 Datenaufbereitung und Analyse . . . . .	62
<b>5 Streudynamiken in orthogonalen Zwei-Farben-Feldern</b>	<b>66</b>
5.1 Experimenteller Aufbau . . . . .	66
5.2 Semiklassische Simulation und Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung	69
5.3 Datenanalyse . . . . .	71
5.4 Ergebnisse und Diskussion . . . . .	73
<b>6 Streudynamiken in parallelen Zwei-Farben-Feldern</b>	<b>81</b>
6.1 Experimenteller Aufbau . . . . .	82
6.2 Messergebnisse . . . . .	84
6.3 Semiklassische Simulation der Phasenabhängigkeiten . . . . .	86
6.4 Phasenabhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit . . . . .	88
6.5 Einfluss der Änderungen der Elektronentrajektorien . . . . .	91
6.6 Phasenabhängigkeit der Gabelstruktur . . . . .	95
<b>7 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>99</b>

*Inhaltsverzeichnis*

<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>102</b>
<b>Danksagung</b>	<b>109</b>
<b>Ehrenwörtliche Erklärung</b>	<b>110</b>

# Kurzfassung

Werden Atome oder Moleküle starken Laserfeldern ausgesetzt, können nach dem Ionisationsprozess verschiedene Folgeprozesse auftreten, die von der Trajektorie des emittierten Elektrons im Laserfeld abhängen. Die Elektronentrajektorie als auch die Ionisationsraten hängen stark von der Form des Laserfeldes ab. Aufgrund dieser hohen Sensibilität konnten in den letzten zwei Jahrzehnten durch die Verwendung präzise geformter (im Subzyklen- und Subfemtosekunden-Zeitbereich) starker Laserfelder das Verständnis und die Kontrolle über die zugrunde liegenden Dynamiken dieser Prozesse deutlich erweitert werden. Dabei stellen orthogonale und parallele Zwei-Farben-Felder, wie sie in dieser Arbeit verwendet werden, einen wirkungsvollen Ansatz dar, um die Ionisationswahrscheinlichkeit und die Trajektorie des ionisierten bzw. gestreuten Elektronenwellenpakets im Laserfeld zu manipulieren, indem die relative Phase  $\varphi_{rel}$  zwischen beiden Feldkomponenten ( $\omega$  und  $2\omega$ ) variiert wird. Dies wird genutzt, um die Ionisations- und Streudynamik der Photoelektronen von Edelgasen zu untersuchen, indem die von der relativen Phase abhängigen Photoelektronenimpulsverteilungen mit einem „Velocity-Map-Imaging“-Spektrometer erfasst und mit der Methode der Phase-der-Phase-Analyse [1] studiert werden.

Die Messergebnisse werden mit einer erweiterten dreidimensionalen semiklassischen Simulation verglichen, die für beliebig polarisierte Laserfelder durchgeführt werden kann und auch Streuergebnisse höherer Ordnung berücksichtigt. Die Simulation bietet zudem die Möglichkeit, verschiedene Klassen von Photoelektronen (d. h. direkte und gestreute Elektronen) getrennt voneinander zu untersuchen, welche zur Analyse der zugrunde liegenden Dynamiken genutzt wird.

Die Messung im orthogonalen Zwei-Farben-Feld ( $\lambda_\omega = 800$  nm,  $\lambda_{2\omega} = 400$  nm) wird dabei mit einer unkonventionellen Ausrichtung der Feldpolarisationen durchgeführt, bei der das ionisierende  $\omega$ -Feld senkrecht zur Oberfläche des bildgebenden Detektors ausgerichtet wird. Dadurch kann die phasenabhängige Auslenkung der Photoelektronenspektren durch das  $2\omega$ -Feld direkt auf dem Detektor abgebildet werden. Die Phasenabhängigkeit der Photoelektronenspektren von Neon und Xenon zeigen einen deutlichen Phasenunterschied zwischen gestreuten und direkten Elektronen. Zudem wird eine starke Abhängigkeit von den verwendeten Zielatomen festgestellt, da bei Xenon eine komplexere Phasenabhängigkeit als bei Neon beobachtet wird.

Bei einer weiteren Messung an Xenon wird ein paralleles Zwei-Farben-Feld im kurzwelligen Infrarotbereich ( $\lambda_\omega = 1800$  nm,  $\lambda_{2\omega} = 900$  nm) verwendet. Um auch Elektronen mit hoher Energie, wie sie bei der Ionisation mit langen Wellenlängen beobachtet werden, messen zu können, wurde in dieser Arbeit basierend auf dem in [2] vorgestellten Design ein Hochenergie-VMI-Spektrometer entwickelt, mit dem Energien bis zu 320 eV detektiert werden können. Ziel dieser Messung ist, anhand der Phasenabhängigkeit der Photoelektronenimpulsverteilung Rückschlüsse auf die Ionisationszeit der Photoelektronen der charakteristische Gabelstruktur [3] zu ziehen, welche in dem verwendeten Wellenlängenbereich gut zu erkennen ist. Basierend auf dem semiklassischen Modell wird gezeigt, dass die Phasenabhängigkeit, die auf die Modulation der Ionisationswahrscheinlichkeit durch das  $2\omega$ -Feld zurückgeht, Informationen über die mittlere gewichtete Ionisationszeit der zur Gabelstruktur beitragenden Elektronen enthält. Das gleichzeitige Auftreten einer Phasenabhängigkeit aufgrund der Modifikation der Elektronentrajektorien führt jedoch zu einer kleinen Verschiebung der Phasenabhängigkeit der Ionisation, sodass die aus der gemessenen Phase gewonnenen Ionisationszeiten um bis zu 80 as verschoben sind.

# Abstract

If atoms or molecules are exposed to strong laser fields, various processes can occur after ionization, and the dynamics of these processes depend on the trajectory of the emitted electrons. Both the ionization rates and the electrons trajectory depend strongly on the shape of the laser field. Thus, tailoring strong laser fields on the sub-cycle and sub-femtosecond time scale, the insight and control of the underlying dynamics of these processes has been significantly increased in the last two decades. Here, orthogonal and parallel two-color laser fields represent an effective approach to manipulate the ionization rates and the subsequent electron movement in the laser-dressed continuum. This is achieved by varying the relative phase,  $\varphi_{rel}$ , between both field components ( $\omega$  and  $2\omega$ ). In this thesis orthogonal and parallel two-color laser fields are used to study the ionization and scattering dynamics of noble gases. Further, phases-dependent photoelectron spectra- captured by a velocity map imaging spectrometer, are studied by applying the recently introduced phase-of-the-phase analysis [1].

The measured results are compared with three dimensional semi-classical calculations, which can be performed for arbitrarily polarized laser fields, while taking higher order scattering events into account. These simulation also allows for the separation and investigation of different classes of photoelectrons (e.q. direct and scattered electrons), which allows for analysis of the underlying dynamics.

In one vmi measurement in this thesis, an orthogonal two-color laser field ( $\lambda_\omega = 800$  nm,  $\lambda_{2\omega} = 400$  nm) with an unconventional orientation, i.e. with the polarization of the ionizing laser field perpendicular to the detector surface and the steering field parallel to it, is used. This allows for the investigation of the phase-dependent photoelectron spectra, as the deflections of photoelectrons due to the  $2\omega$ -field are directly mapped onto the detector. The phase dependence of the photoelectron spectra of neon and xenon shows clear phase shifts between scattered and direct electrons. When comparing the phase dependency of neon and xenon, a strong target dependency is observed. Namely xenon show vastly more complex phase dependence than neon. Further investigations of xenon were performed using parallel two-color field within the short-wave infrared range ( $\lambda_\omega = 1800$  nm,  $\lambda_{2\omega} = 900$  nm). To measure electrons with high energy, which are created during ionization with these long wavelengths, a high-energy VMI spectrometer was developed based on the design presented in [2]. Using this device, electron energies up to 320 eV can be detected. The intention of this measurement is to retrieve the ionization time of the photoelectrons contributing to the characteristic fork structure [3] based on the phase dependencies of the contributing photoelectrons. Using these wavelengths, the fork structure can be easily detected and provides a well-suited benchmark for this study. Based on the semi-classical model it is shown that phase-dependent photoelectron signal, which encodes information about the contributing ionization times, is convoluted with the phase dependencies resulting from perturbation of the electron trajectories propagating in the laser-dressed continuum. Independent on the degree of the perturbation this can mislead assignment of the ionization time by up to 80 as.

# 1 Einleitung

Seit der Erfindung des ersten Lasers [4] fand eine kontinuierliche Steigerung der erreichbaren Feldstärken statt. Heute können bereits elektrische Feldstärken, die im Bereich der in Atomen und Molekülen auftretenden Felder liegen, erreicht werden. Eine Schlüsselkomponente zur Erzielung dieser Feldstärken ist die Erzeugung von kurzen Piko- bis Femtosekundenlaserpulsen, die durch die Entwicklung von Titan-Saphir-Lasersystemen [5, 6] und der anschließenden Verstärkung der Laserpulse mittels des CPA<sup>1</sup>-Verfahrens [7, 8] ermöglicht wurde. Jüngste Fortschritte ermöglichen, mittels optisch parametrischer Verstärker (OPA<sup>2</sup>) [9–11] die Erzeugung von intensiven Femtosekundenlaserpulsen, deren Trägerwellenlänge über einen breiten Bereich des sichtbaren und infraroten Spektrums eingestellt werden kann. Die Verfügbarkeit solcher Lasersysteme bildet die Arbeitsgrundlage der Starkfeld-Laserphysik, die sich mit Wechselwirkungen von Atomen und Molekülen in starken Laserfeldern befasst.

Neben der Entdeckung verschiedener Ionisationsmechanismen wie der Multiphotonenionisation [12, 13], der „Above-Threshold“-Ionisation (ATI) [14], der Tunnelionisation [15] oder der „Barrier-Suppression“-Ionisation (BSI) [16] wurden in starken Laserfeldern zahlreiche Prozesse beobachtet, die auf die Trajektorie der ionisierten Elektronen im Laserfeld zurückzuführen sind. Hierbei sind besonders die Erzeugung hoher Harmonischer (HHG<sup>3</sup>) [17] oder die nichtsequentielle Doppelionisation (NSDI) [18, 19] zu nennen, aber auch Merkmale im Photoelektronenenergiespektrum, die auf dem Prozess der elastischen Streuung des Elektrons am Ion beruhen. Beispiele hierfür sind das Plateau hochenergetischer Elektronen [20], die Niedrigenergiestruktur (LES<sup>4</sup>) [21, 22] und ihre gabelförmige Erweiterung [3].

Wegen der starken Interaktion des Elektrons mit dem Ursprungion, die bei diesen Streuprozessen auftritt, sind in den Photoelektronenspektren eine Vielzahl fundamentaler Informationen über die Struktur des Ions bzw. Potenzials und die zeitliche Dynamik während der Wechselwirkung mit dem Laserfeld enthalten [23–25]. Eine Abfrage dieser Informationen wird durch die Verwendung von im Subzyklen- und Subfemtosekunden-Zeitbereich präzise geformter starker Laserfelder ermöglicht, wodurch im letzten Jahrzehnt die Einsicht und Kontrolle über die zugrunde liegenden Elektronen- und Ionendynamiken deutlich erweitert werden konnte.

Beispiele solcher geformten Felder sind das Polarisationsgating [26–29], Einzelzyklenpulse mit bekannter bzw. stabiler CE<sup>5</sup>-Phase [30–32] sowie parallele und orthogonale Zwei-Farben-Felder [33–40].

Dabei stellen die in dieser Arbeit eingesetzten parallelen und orthogonalen Zwei-Farben-Felder einen einfachen, aber wirkungsvollen Ansatz dar, um die Ionisationswahrscheinlichkeit und die

---

<sup>1</sup>engl.: chirped pulse amplification

<sup>2</sup>engl.: optical parametric amplifier

<sup>3</sup>engl.: high harmonic generation

<sup>4</sup>engl.: low energy structure

<sup>5</sup>engl.: carrier envelope

Trajektorie des ionisierten bzw. gestreuten Elektronenwellenpakets im Laserfeld zu manipulieren, indem die relative Phase  $\varphi_{rel}$  zwischen beiden Feldkomponenten variiert wird.

Diese Möglichkeit wurde bereits in einer Vielzahl von Publikationen angewandt, um verschiedene Effekte zu untersuchen [39–44]. Einige jüngere Beispiele für die Verwendung von Zwei-Farben-Feldern sind Untersuchungen zur Elektronenkorrelation der nichtsequenziellen Doppelionisation [45], Interferenzeffekte zwischen Elektronenwellenpaketen, die innerhalb eines Laserzyklus emittiert wurden [46], und zeitaufgelöste Untersuchungen zur Photoelektronenholographie [47]. In dieser Arbeit werden orthogonale und parallele Zwei-Farben-Felder in Kombination mit einem impulsabbildenden Spektrometer, genauer einem VMI<sup>6</sup>-Spektrometer, verwendet, um die Phasenabhängigkeit der resultierenden Photoelektronenimpulsverteilungen von Edelgasen zu untersuchen. Das Ziel dieser Messungen ist es, Erkenntnisse über die zugrunde liegenden Dynamiken zu gewinnen. Die Messdaten werden dazu mit den Ergebnissen einer für diese Arbeit entwickelten erweiterten semiklassischen Simulation (Kapitel 3) verglichen, die für beliebig polarisierte Laserfelder die resultierenden Photoelektronenimpulsverteilungen berechnet. Mithilfe der Simulation können die dabei auftretenden Streuprozesse getrennt voneinander untersucht werden und verschiedenen Merkmalen der Photoelektronenimpulsverteilung zugeordnet werden. Eine Untersuchung der Phasenabhängigkeit der gemessenen und simulierten Photoelektronenimpulsverteilungen mit der Phase-der-Phase-Analyse [1] liefert einen weiteren Ansatz, verschiedene Prozesse zu unterscheiden und präzise Informationen über ihre zeitlichen Dynamiken zu erhalten.

Für orthogonale Zwei-Farben-Felder kann dabei in Kapitel 5 eine unterschiedliche Phasenabhängigkeit zwischen direkten (nicht gestreuten) und gestreuten Elektronen beobachtet sowie die Kontrolle über die Photoelektronenimpulsverteilungen demonstriert werden. Dabei wird auch eine hohe Abhängigkeit von den Zielatomen (Neon und Xenon) festgestellt. Das Spektrum von Xenon weist hierbei eine deutlich strukturiertere Phasenabhängigkeit auf.

Bei einer weiteren Messung mit Xenon in einem parallelen Zwei-Farben-Feld (Kapitel 6) wird dagegen das ambitionierte Ziel verfolgt, anhand der Phasenabhängigkeit der Photoelektronenimpulsverteilung Rückschlüsse auf die Ionisationszeit der Photoelektronen zu ziehen. Dabei wird die charakteristische Gabelstruktur [3] von Photoelektronen, die zu unterschiedlichen Rückkehrzeiten gestreut werden, betrachtet. Da die Rückkehrzeiten dieser Photoelektronen von ihrer Ionisationszeit innerhalb eines klar definierten Zeitfensters abhängen, ist die Gabelstruktur als gute Referenz für die Ermittlung der Ionisationszeiten zu betrachten.

Für diese Messung kommt ein im Rahmen der Dissertation basierend auf dem in [2] vorgestellten Design entwickeltes Hochenergie-VMI-Spektrometer zum Einsatz, das unter anderem in Kapitel 4 vorgestellt wird. Die Elektronendetektion wird dabei auf die Erfassung von Einzelereignissen optimiert, während durch schnelles Schalten des Detektors Hintergrundsignale unterdrückt werden. Dadurch kann eine sehr hohe Dynamik des Messsignals erreicht werden.

Eine Analyse der semiklassischen Simulation zeigt, dass die Phasenabhängigkeit der Photoelektronenimpulsverteilung von zwei im Experiment nicht zu entkoppelnden Einflüssen abhängt. Zum einen von der phasenabhängigen Modulation der Ionisationswahrscheinlichkeit und zum anderen von der Modulation der Trajektorie des Elektrons nach der Ionisation.

Dabei wird die Phasenabhängigkeit der gemessenen Photoelektronenimpulsverteilung von der

---

<sup>6</sup>engl.: velocity map imaging



Modulation der Ionisationswahrscheinlichkeit dominiert, in welcher der gewichtete Mittelwert der Ionisationszeit der beteiligten Trajektorien kodiert ist. Die Modifikation der Elektronentrajektorien führt jedoch zu einer kleinen Verschiebung der aus der Phasenabhängigkeit gewonnenen mittleren Ionisationszeit um etwa 80 as.

Die vorliegende Arbeit ist wie folgt gegliedert:

In Kapitel 2 werden in einer allgemeinen Betrachtung grundlegende Konzepte der Starkfeld-Laserphysik erläutert. Dabei wird zunächst auf das semiklassische Drei-Stufen-Modell eingegangen, wobei der Schwerpunkt auf der Tunnelionisation und der Bewegung freier Elektronen im Laserfeld liegt. Weiterhin wird auf die Wechselwirkung des Elektrons mit dem Mutterion in Form von Streuung sowie die mathematische Beschreibung von Femtosekunden-Laserpulsen eingegangen.

Die erweiterte semiklassische Simulation, die zur Beschreibung der in Kapitel 5 und 6 vorgestellten Messergebnisse verwendet wird, wird in Kapitel 3 detailliert erläutert. Diese berechnet für beliebig polarisierte Laserfelder die dreidimensionalen Photoelektronenimpulsverteilungen. Im Gegensatz zu typischen semiklassischen Simulationen wird das semiklassische Modell hier um die Elektronenstreuung erweitert, wobei auch Streuereignisse höherer Ordnung berücksichtigt werden. Außerdem wird auf grundlegende Strukturen in der Elektronenimpulsverteilung eingegangen.

Kapitel 4 gibt einen Überblick über das verwendete Lasersystem, die Erzeugung und Kontrolle von Zwei-Farben-Laserfeldern sowie der Detektion von Elektronenimpulsverteilungen mittels eines VMI-Spektrometers. In Bezug darauf wird das im Rahmen der Promotion konstruierte Hochenergie-VMI-Spektrometer vorgestellt und die verwendeten Methoden der Datenerfassung und Analyse erläutert.

In den Kapiteln 5 und 6 werden Photoelektronenimpulsverteilungen verschiedener Edelgase in orthogonalen sowie parallelen Zwei-Farben-Feldern vorgestellt und mithilfe der erweiterten semiklassischen Simulation untersucht.

Abschließend werden in Kapitel 7 die vorliegenden Ergebnisse zusammengefasst und ein Ausblick für die weitere Anwendbarkeit von Zwei-Farben-Feldern im Rahmen von Photoelektronenspektroskopie gegeben.

## 2 Grundlagen der Starkfeld-Laserphysik

Werden Atome oder Moleküle starken Laserfeldern ausgesetzt, für die das Potenzial des elektrischen Feldes vergleichbar mit der Stärke des Bindungspotenzials ist, können diese über unterschiedliche Prozesse ionisiert werden, auch wenn die Energie  $\mathcal{E}_{\text{photon}} = h\nu$  einzelner Laserphotonen nicht ausreicht, um das Ionisationspotenzial  $\mathcal{E}_{I_p}$  zu überwinden. Die hier zu nennenden Ionisationsprozesse sind

1. Multiphotonenionisation (MPI) [12, 13, 48]
2. Tunnelionisation [15]
3. „Barrier-Suppression“-Ionisation (BSI) [16].

Bei der Multiphotonenionisation findet die Ionisation über die gleichzeitige Absorption mehrerer Photonen statt (Abb. 2.0.1 (a)). Die Wahrscheinlichkeit,  $n$  Photonen zu absorbieren, skaliert hierbei proportional zur Intensität  $I^n$ . Werden bei der MPI mehr Photonen absorbiert, als zum Überwinden des Ionisationspotenzials nötig sind, führt dies zu mehreren um die Photoenergie separierten Peaks im Energiespektrum des ionisierten Elektrons. Man spricht dabei von der sogenannten „Above-Threshold“-Ionisation [14].

Im Tunnelionisationsprozess wird das Bindungspotenzial des Atoms/Moleküls durch die Anwesenheit des Laserfeldes so verformt, dass eine Potenzialbarriere entsteht, durch welche ein gebundenes Elektron mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit tunneln kann (b). Mit zunehmender Intensität wird die Barriere immer stärker unterdrückt, was zu einem Anstieg der Tunnelwahrscheinlichkeit führt, bis eine Intensität von  $I_{BS} = \mathcal{E}_{I_p}^4/16$  (in atomaren Einheiten) erreicht wird. In dem Fall der „Barrier-Suppression“-Ionisation wird die Barriere unter das Bindungspotenzial gedrückt und das Elektron kann direkt entkommen (c). Die hier angegebene „Barrier-Suppression“-Intensität  $I_{BS}$  bezieht sich auf eine eindimensionale Betrachtung. Bei einer vollständigen dreidimensionalen Betrachtung muss von einer höheren Intensität ausgegangen werden [49].

Um zu entscheiden, welcher Ionisationsprozess dominiert, kann der in [15] eingeführte Keldysh-Parameter  $\gamma = \sqrt{\mathcal{E}_{I_p}/2U_p}$  herangezogen werden, welcher als das Verhältnis zwischen der Zeit, die das Elektron für die Durchquerung der Barriere benötigt, und der Periodendauer des Laserfeldes interpretiert werden kann [50].  $U_p = I/(4\omega_0^2)$  (in atomaren Einheiten) ist das ponderomotive Potenzial bzw. die über einen Laserzyklus gemittelte Zitterenergie eines freien Elektrons im Laserfeld (Gl. 2.1.23).

Für  $\gamma > 1$  oszilliert das durch das Laserfeld modulierte Atompotenzial so schnell, dass das Elektron nicht rechtzeitig durch die entstehenden Coulomb-Barriere tunneln kann, bevor sich das Vorzeichen des elektrischen Feldes umkehrt. Eine Ionisation des Atoms durch die Absorption mehrerer Photonen (MPI) ist jedoch möglich.

Für  $\gamma < 1$  ist die Zeit, die das Elektron zum Durchqueren der Coulomb-Barriere braucht, schnell

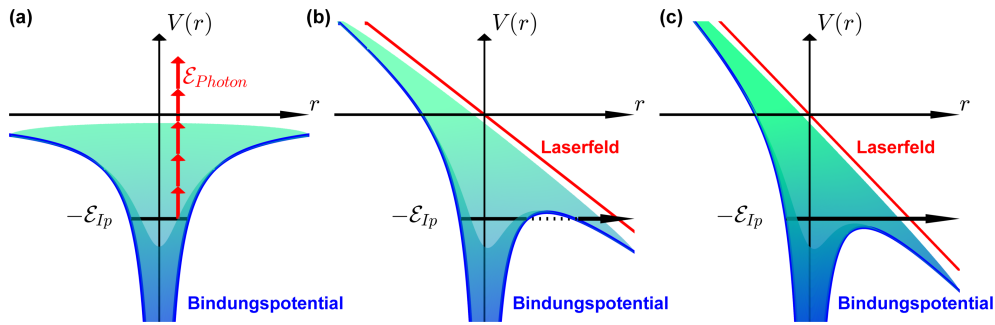


Abbildung 2.0.1: (a) Schema der Multiphotonenionisation. Das mit  $\mathcal{E}_{Ip}$  gebundene Elektron kann durch die gleichzeitige Absorption mehrerer Photonen ionisiert werden. (b) Schema der quasistatischen Feldionisation. Das atomare Potenzial wird durch die Einwirkung des Laserfeldes deformiert, sodass das Elektron mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit durch die Potenzial-Barriere tunneln kann. (c) Schema der „Barrier-Suppression“-Ionisation. Durch die Einwirkung des Laserfeldes wird die Potenzial-Barriere unter die Bindungsenergie gedrückt, sodass das Elektron direkt entkommen kann.

im Bezug zur Periodendauer des Laserfeldes, sodass von einer quasistatischen Tunnelionisation gesprochen werden kann. Im Unterschied zur Multiphotonenionisation tritt für diesen Fall ein Großteil der Ionisation nahe der Extrema der elektrischen Feldstärke  $E$  auf.

Für in der Vergangenheit typische Parameter der Starkfeld-Laserphysik ( $\lambda = 800 \text{ nm}$ ,  $I = 1 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $\mathcal{E}_{Ip} = -15.76 \text{ eV}$ ) ist  $\gamma \approx 1$ , sodass sowohl MPI als auch Tunnelionisation stattfinden kann. Für eine Beschreibung der im Elektronenenergiespektrum auftretenden Beobachtungen erweist sich eine Betrachtung des Tunnelionisationsbereiches meistens als ausreichend genau. Zudem wird im Rahmen dieser Dissertation durch die Nutzung längerer Wellenlängen tiefer in den Tunnelionisationsbereich ( $\gamma < 1$ ) vorgedrungen.

In diesem Kapitel wird daher mittels des semiklassischen Drei-Stufen-Modells [51–53] ein Überblick der durch Tunnelionisation auftretenden Effekte und ihrer theoretischen Beschreibung gegeben. Hierbei sollen insbesondere Felder mit verschiedenen Polarisationsformen (linear, elliptisch, Zwei-Farben-Felder) berücksichtigt werden. Fortan werden, wenn nicht anderweitig angegeben, atomare Einheiten verwendet, wobei die numerischen Werte der Naturkonstanten  $m_e$ ,  $e$ ,  $\hbar$  und  $k_e = 1/(4\pi\epsilon_0)$  auf eins normiert sind. Die Einheit wird dabei in atomaren Einheiten angegeben, wobei in dieser Arbeit die Abkürzung [a.u.<sup>1</sup>] verwendet wird.

## 2.1 Drei-Stufen-Modell

In einer vereinfachten Betrachtung kann das Verhalten von Atomen und kleinen Molekülen in starken Laserfeldern mit dem semiklassischen Drei-Stufen-Modell der Starkfeldionisation auf sehr anschauliche und intuitive Weise beschrieben werden [51–53]. Die drei Stufen sind

1. Tunnelionisation
2. Bewegung des ionisierten Elektrons im Laserfeld
3. Wechselwirkung des Elektrons mit dem Ursprungion

Folgend wird im Detail auf jeden Schritt eingegangen.

<sup>1</sup>engl.: atomic units

## Tunnelionisation

Bei der Tunnelionisation eines Elektrons durch die Potenzialbarriere des Atoms handelt es sich um einen rein quantenmechanischen Prozess. Es ist jedoch möglich mithilfe der WKB-Näherung (Wenzel, Kramers, Brillouin) [54–56] eine semiklassische Lösung für die Ionisationsrate  $\Gamma$  zu formulieren. Hierbei wird eine Lösung der eindimensionalen Schrödingergleichung angenähert, indem die Potenzialbarriere in dünne rechteckige Teilsegmente zerlegt wird, für welche die Tunnelwahrscheinlichkeit einfach zu berechnen ist. Die Tunnelwahrscheinlichkeit durch die gesamte Barriere zu tunneln, ergibt sich dabei aus der Multiplikation der Tunnelwahrscheinlichkeiten der einzelnen Segmente. Hierbei muss beachtet werden, dass die WKB-Näherung nur gilt, wenn die Änderung des Potenzials über die räumliche Ausdehnung einer Wellenlänge der Wellenfunktion ( $\lambda = 2\pi\hbar/p$ ) klein ist.

Im Fall eines Wasserstoffatoms im Grundzustand in einem elektrostatischen Feld mit der Feldstärke  $E$ , folgt mit der WKB-Näherung die Landau-Rate [57]

$$\Gamma(E) = \frac{4}{E} \exp[-2/(3E)]. \quad (2.1.1)$$

Für oszillierende elektrische Felder, wie zum Beispiel linear polarisierte Laserfelder, werden in der Literatur eine Vielzahl an Raten aufgeführt, welche sich größtenteils auf die ADK-Rate (Amosov, Delone, Krainov) [58, 59] bzw. die PPT-Rate (Perelomov, Popov, Terent) [60] beziehen und diese um weitere Korrekturfaktoren ergänzen. Dies ist notwendig, um stärkere Laserfelder und komplexere Atome und Moleküle zu beschreiben. Die ADK-Rate entspricht dabei dem quasistatischen Grenzfall ( $\gamma \rightarrow 0$ ) der PPT-Rate [61, 62].

In dieser Arbeit wird die in [63] als Gleichung 60 aufgeführte quasistatische Tunnelrate ( $\gamma \rightarrow 0$ ) verwendet, die die orbitale Struktur berücksichtigt. Für Atome gilt im Allgemeinen

$$\Gamma_{Atom} = \frac{|C_{nl}|^2 Q^2(l, m)}{(2\kappa)^{|m|} |m|!} \left( \frac{4\kappa^2}{|E|} \right)^{2Z/\kappa - |m| - 1} \exp \left[ -\frac{2\kappa^3}{3|E|} \right] \quad (2.1.2)$$

wobei  $Z$  die totale Ladungszahl ist und  $C_{nl}$ ,  $\kappa = \sqrt{2\mathcal{E}_{ip}}$  sowie

$$Q(l, m) = (-1)^{(|m|-m)/2} \sqrt{\frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2(l-|m|)!}} \quad (2.1.3)$$

atomspezifische Konstanten sind. Die spezifischen Konstanten verschiedener Atome können in Tabelle 2.1 eingesehen werden.

Diese Rate wird außerdem um einen zusätzlichen empirischen Korrekturfaktor

$$\Gamma_{BS} = \exp \left[ -\beta \frac{2Z^2 |E|}{\kappa^5} \right] \quad (2.1.4)$$

für hohe Feldintensitäten nahe der „Barrier-Suppression“-Intensität ergänzt [64].  $\beta$  ist ein empirisch ermittelter atomspezifischer Parameter (siehe Tab. 2.1) und es gilt

$$\Gamma = \Gamma_{Atom} \cdot \Gamma_{BS}. \quad (2.1.5)$$

Tabelle 2.1: Atomspezifische Konstanten für verschiedene Edelgase [64–67]. Da in [64] keine  $\beta$ -Werte für Krypton und Xenon angegeben sind, wird der  $\beta$ -Wert von Argon als Schätzwert verwendet.

Atom	$\mathcal{E}_{ip}$ [eV]	$\beta$	$C_{nl}$	$l$
He	-24.59	7	2.87	0
Ne	-21.56	9	2.10	1
Ar	-15.76	9	2.51	1
Kr	-14.00	(9)	2.59	1
Xe	-12.13	(9)	2.72	1

Der Einfluss des Korrekturfaktors auf die Ionisationsrate  $\Gamma$  ist in Abbildung 2.1.1 (a) in Abhängigkeit von der elektrischen Feldstärke  $E$  am Beispiel von Argon ( $\mathcal{E}_{Ip} = 15,76$  eV) dargestellt. Das verdeutlicht, dass die Ionisationsrate in der Nähe der „Barrier-Suppression“-Feldstärke  $E_{BS}$  ohne den Korrekturfaktor überschätzt wird. (b) zeigt, wie sich die normierte Ionisationsrate  $\Gamma(E) / \max(\Gamma(E))$  von Argon über den zeitlichen Verlauf eines gaußförmigen Laserpulses ( $I_{max} = 1 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ,  $\lambda = 800$  nm,  $\tau_{FWHM} = 15$  fs) verhält. Die volle zeitliche Halbwertsbreite (FWHM $^2$ ) des Pulses  $\tau_{FWHM}$  wurde wegen einer verbesserten Darstellbarkeit gegenüber den Messungen dieser Arbeit ( $\tau_{FWHM} \approx 50$  fs) verkürzt. Maxima der Ionisationsrate treten während Maxima des Betrags der elektrischen Feldstärke auf.

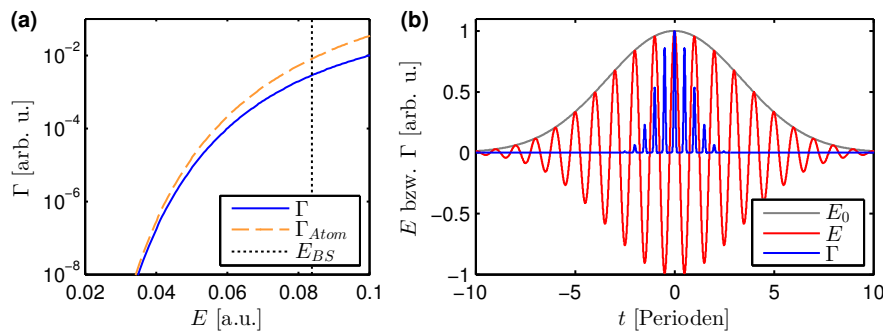


Abbildung 2.1.1: (a) Vergleich der unkorrigierten Ionisationsrate von Argon  $\Gamma_{Atom}$  (blau) mit der korrigierten Ionisationsrate  $\Gamma$  (orange) in Abhängigkeit der elektrischen Feldstärke  $E$ . Die Ionisationsrate  $\Gamma_{Atom}$  weicht in der Nähe der „Barrier-Suppression“-Feldstärke  $E_{BS}$  stark von der korrigierten Rate  $\Gamma$  ab. (b) Normierter zeitlicher Verlauf der Ionisationsrate unter Einfluss eines gaußförmigen Laserpulses ( $I_{max} = 1 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ,  $\lambda = 800$  nm,  $\tau_{FWHM} = 15$  fs).

Um die Wahrscheinlichkeit  $W_i$  der Ionisation zu einem diskreten Zeitpunkt  $t_i$  zu bestimmen, muss zusätzlich zur Ionisationsrate  $\Gamma$  die Entleerung des Grundzustandes berücksichtigt werden. Dazu wird die Ionisationsrate mit der Population des Grundzustandes  $P(t_i)$  multipliziert. Aus der Ratengleichung

$$\frac{dP(t)}{dt} = -\Gamma(t) P(t) \quad (2.1.6)$$

folgt

$$W_i(t_i) = -\frac{dP(t_i)}{dt_i} = \Gamma(t_i) P(t_i) = \Gamma(t_i) \exp \left[ -\int_{-\infty}^{t_i} \Gamma(t') dt' \right]. \quad (2.1.7)$$

<sup>2</sup>engl.: full width at half maximum

Nachdem der Tunnelprozess mit dem Austritt aus der Barriere abgeschlossen ist, wird das Elektron als freies Elektron in einem Laserfeld betrachtet. Dabei kann das Elektron bereits nach dem Tunnelprozess eine Geschwindigkeitskomponente  $v_{\perp}$  senkrecht zur Polarisation des Laserfeldes  $\mathbf{E}$  erhalten. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung

$$W_{\perp}(E, v_{\perp}) = \sqrt{\frac{\kappa}{|E|\pi}} \exp\left[-\frac{\kappa}{|E|}v_{\perp}^2\right] \quad (2.1.8)$$

der senkrechten Anfangsgeschwindigkeiten wird durch die ADK-Theorie beschrieben [58, 68] und durch Experimente bestätigt [69]. Sie muss insbesondere bei elliptisch polarisierten oder senkrechten Zwei-Farben-Laserfeldern berücksichtigt werden [70, 71].

### Freies Elektron im Laserfeld

Wenn das Elektron die Coulomb-Barriere zum Ionisationszeitpunkt  $t_i$  verlassen hat, wird es im Drei-Stufen-Modell als freies Elektron in einem Laserfeld betrachtet. Das Laserfeld wird in der klassischen Betrachtung als elektromagnetische Welle dargestellt. Entsprechend wirkt die Kraft  $\mathbf{F} = q\mathbf{E} + q\mathbf{v} \times \mathbf{B}$  auf das ionisierte Elektron, als auch auf das Ursprungselektron. Aufgrund der entgegengesetzten Ladungen sind die Trajektorien qualitativ invertiert, jedoch skaliert die Ionentrajektorie zusätzlich mit der jeweiligen Ionenmasse. Bevor in diesem Abschnitt die Bewegungsgleichung des Elektrons gelöst wird, wird zunächst das elektrische und magnetische Laserfeld beschrieben.

Im Vakuum gilt nach den Maxwell-Gleichungen (entnommen aus [72])

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\nabla\Phi(\mathbf{r}, t) - \frac{\partial}{\partial t}\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \quad (2.1.9)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r}, t), \quad (2.1.10)$$

wobei  $\Phi$  das Skalarpotenzial und  $\mathbf{A}$  das Vektorpotenzial bezeichnet. Wird nun entsprechend der Coulomb-Eichung die Divergenzfreiheit des Vektorpotenzials gefordert ( $\nabla \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 0$ ) und berücksichtigt, dass keine Ladungsquellen bzw. Ströme vorhanden sind ( $\Phi = 0, \mathbf{j} = 0$ ), folgt durch Einsetzen von Gleichung 2.1.9 und 2.1.10 in die 4. Maxwell'schen Gleichung (erweitertes Durchflutungsgesetz)

$$\nabla \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \Rightarrow \Delta \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 0. \quad (2.1.11)$$

Das Vektorpotenzial muss also die homogene Wellengleichung erfüllen. Eine übliche Lösung für ein linear polarisiertes Laserfeld ist durch

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = -A_0(\mathbf{r}, t) \sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t + \varphi) \mathbf{e} \quad (2.1.12)$$

gegeben, wobei  $A_0(\mathbf{r}, t)$  die orts- und zeitabhängige Amplitude,  $\omega$  die Kreisfrequenz,  $\varphi$  die Phase der ebenen Welle ist. Der Wellenvektor  $\mathbf{k}$  zeigt in Propagationsrichtung der Wellenfront,  $\mathbf{e}$  ist der Einheitsvektor, der die Polarisationsrichtung des Vektorpotenzials angibt. Dabei stehen  $\mathbf{k}$  und  $\mathbf{e}$  senkrecht zueinander, sodass  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{e} = 0$  gilt. Um eine einfache analytische Lösung der

Bewegungsgleichungen darzustellen, wird für die Amplitude ein Laserpuls mit flachem Mittelteil angenommen, der adiabatisch an- und absteigt. Weiterhin bleibt die Amplitude im Bewegungsbereich der Ladungen konstant ( $A_0(\mathbf{r}, t) = A_0$ ).

Für die elektrische Feldstärke  $\mathbf{E}$  und die magnetische Flussdichte  $\mathbf{B}$  folgt nun mit Gleichung 2.1.9 und 2.1.10

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\omega A_0 \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t + \varphi) \mathbf{e} \quad (2.1.13)$$

und

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = -|\mathbf{k}| A_0 \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t + \varphi) \left( \frac{\mathbf{k}}{|\mathbf{k}|} \times \mathbf{e} \right). \quad (2.1.14)$$

Anhand der Relation  $\omega = c \cdot |\mathbf{k}|$  ist die Amplitude der Flussdichte  $\mathbf{B}$  um den Faktor  $c = 137$  a.u. (Lichtgeschwindigkeit in atomaren Einheiten) geringer. Daraus folgt, dass die Lorentz-Kraft  $\mathbf{F}_{Lorentz} = q\mathbf{v} \times \mathbf{B}$  maximal mit dem Faktor  $|\mathbf{v}|/c$  skaliert. Solange  $|\mathbf{v}|/c \ll 0.1$  gilt, kann das magnetische Feld näherungsweise vernachlässigt, und das Laserfeld nur mit der elektrischen Feldstärke  $\mathbf{E}$  als oszillierender elektrischer Dipol beschrieben werden. Der Gültigkeitsbereich dieser „Dipolnäherung“ wird in [73–76] ausführlicher diskutiert. Durch die Vernachlässigung von  $\mathbf{B}$  bewegen sich die Ladungen nur in der Polarisationssebene von  $\mathbf{e}$  für die  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{Ebene} = 0$  gilt. Somit vereinfachen sich  $\mathbf{E}$  und  $\mathbf{B}$  weiter zu

$$\mathbf{E}(t) = E_0 \cos(\omega t + \varphi) \mathbf{e} \quad (2.1.15)$$

$$\mathbf{A}(t) = -\frac{E_0}{\omega} \sin(\omega t + \varphi) \mathbf{e}. \quad (2.1.16)$$

Für eine Ladung  $q$ , die ab dem Zeitpunkt  $t_i$  dem Feld ausgesetzt wird, gilt entsprechend der Bewegungsgleichung

$$\mathbf{a}(t) = \frac{q}{m} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (2.1.17)$$

$$\mathbf{v}(t, t_i) = \frac{q}{m} \cdot \int_{t_i}^t \mathbf{E}(t') dt' + \mathbf{v}_0 = -\frac{q}{m} [\mathbf{A}(t) - \mathbf{A}(t_i)] + \mathbf{v}_0 \quad (2.1.18)$$

$$\mathbf{r}(t, t_i) = -\frac{q}{m} \cdot [\boldsymbol{\alpha}(t) - \boldsymbol{\alpha}(t_i)] + \left[ \frac{q}{m} \mathbf{A}(t_i) + \mathbf{v}_0 \right] (t - t_i) + \mathbf{r}_0, \quad (2.1.19)$$

wobei  $\mathbf{v}_0$  und  $\mathbf{r}_0$  die Geschwindigkeit und die Position zum Ionisationszeitpunkt angeben. Weiterhin wird mit

$$\boldsymbol{\alpha}(t) = \int_{-\infty}^t \mathbf{A}(t') dt' = \frac{E_0}{\omega^2} \cos(\omega t + \varphi) \mathbf{e} \quad (2.1.20)$$

die in [77] eingeführte Notation verwendet. Sie hat den Vorteil, dass sobald  $\mathbf{E}(t)$ ,  $\mathbf{A}(t)$  und  $\boldsymbol{\alpha}(t)$  bekannt sind, die Trajektorien für verschiedene  $t_i$  mit Gleichung 2.1.19 direkt bestimmt werden können.

Eine interessante, über Spektroskopie direkt messbare Größe ist der finale Impuls bzw. die Energie ( $t \rightarrow \infty$ ), die die Ladungen durch die Wechselwirkung mit dem Laserpuls erhalten. Ohne Anfangsgeschwindigkeit folgt entsprechend der Erhaltung des kanonischen Impuls mit

Gleichung 2.1.18 und  $\mathbf{A}(-\infty) = \mathbf{A}(\infty) = 0$  für den finalen Impuls  $\mathbf{p}_f$  und die finale Energie  $\mathcal{E}_f$

$$\mathbf{p}_f = m \cdot \mathbf{v}(t = \infty, t_i) = q\mathbf{A}(t_i) \quad (2.1.21)$$

$$\mathcal{E}_f = \frac{m}{2} \mathbf{v}^2(t = \infty, t_i) = \frac{mq^2}{2} \mathbf{A}^2(t_i) = \frac{1}{2} \frac{q^2 E_0^2}{m\omega^2} \sin^2(\omega t + \varphi) = 2U_p \sin^2(\omega t + \varphi). \quad (2.1.22)$$

$U_p$  ist das bereits anfangs erwähnte ponderomotive Potenzial  $U_p$ , welches die über eine Laserperiode  $T = 2\pi/\omega$  gemittelte Zitterenergie der Ladung  $q$  darstellt:

$$U_p = \left\langle \frac{1}{2} m \mathbf{v}_{\text{Zitter}}^2(t) \right\rangle_T = \frac{1}{2} \frac{q^2}{m} \left\langle \mathbf{A}^2(t) \right\rangle_T = \frac{1}{2} \frac{q^2 E_0^2}{m\omega^2} \left\langle \sin^2(\omega t + \varphi) \right\rangle_T = \frac{1}{4} \frac{q^2 E_0^2}{m\omega^2} \quad (2.1.23)$$

Finden keine weiteren Wechselwirkungen des Elektrons mit dem Ursprungion statt, so ist die maximale, durch die Beschleunigung im Laserfeld erreichbare finale Energie durch  $\max(\mathcal{E}_f) = 2U_p$  gegeben.

In Abbildung 2.1.2 sind einige Elektronen-Trajektorien für verschiedene Laserfelder dargestellt. Das Laserfeld ist in (a) linear ( $E_z = E_0 \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$ ) und in (b) zirkular ( $E_z = E_0 \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$ ,  $E_y = E_0 \sin(\omega t) \mathbf{e}_y$ ) polarisiert. In (c) ist die Kombination zweier linear polarisierter Laserfelder dargestellt, wobei die Polarisierungen orthogonal zueinander ausgerichtet sind und eines der Felder mit der doppelten Frequenz oszilliert sowie eine um den Faktor  $\epsilon$  niedrigere Amplitude besitzt ( $E_z = E_0 \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$ ,  $E_y = E_0 \epsilon \cos(2\omega t + \varphi_{rel}) \mathbf{e}_y$ ). Die relative Phase  $\varphi_{rel}$  zwischen beiden Feldern hat einen maßgeblichen Einfluss auf die resultierende Rotation der Feldvektoren. Eine solche Feldkonfiguration wird als orthogonales Zwei-Farben-Feld bezeichnet. Für die Berechnung der Elektronen-Trajektorien wurde  $E_0 = 0.0534$  a.u.,  $\omega = 0.057$  a.u. ( $I = 1 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ,  $\lambda = 800$  nm),  $\epsilon = 0.1$  und  $\varphi_{rel} = -45^\circ$  verwendet und angenommen, dass das Elektron ohne Anfangsgeschwindigkeit im Nullpunkt startet.

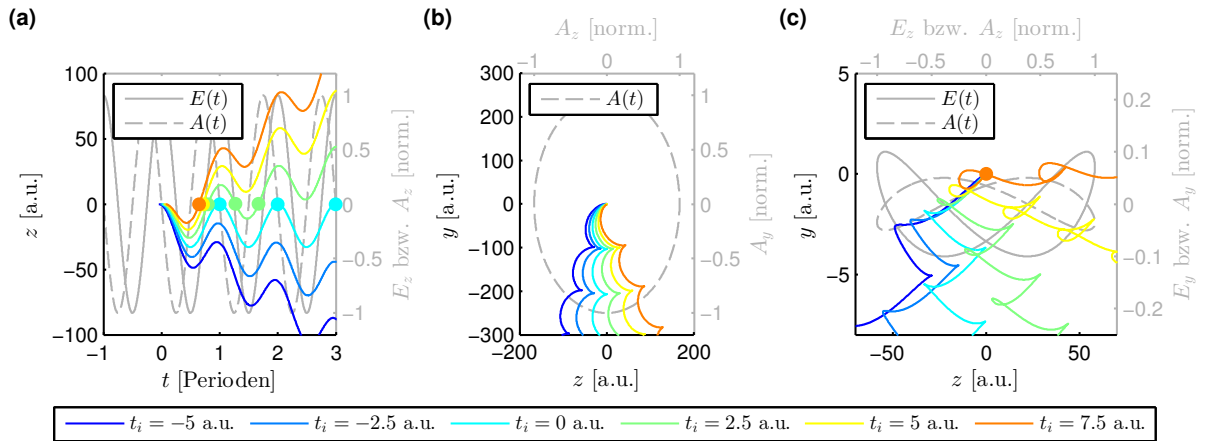


Abbildung 2.1.2: Elektronen-Trajektorien zu einer Serie von Ionisationszeiten  $t_i$  für unterschiedlich polarisierte Laserfelder. (a) linear polarisiert ( $E_z = E_0 \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$ ), (b) zirkular polarisiert ( $E_z = E_0 \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$ ,  $E_y = E_0 \sin(\omega t) \mathbf{e}_y$ ) und (c) für ein orthogonales Zwei-Farben-Feld ( $E_z = E_0 \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$ ,  $E_y = E_0 \epsilon \cos(2\omega t + \varphi_{rel}) \mathbf{e}_y$ ) mit  $E_0 = 0.0534$  a.u.,  $\omega = 0.057$  a.u.,  $\epsilon = 0.1$  und  $\varphi_{rel} = -45^\circ$ . Das normierte Vektorpotenzial und die normierte Feldstärke sind in grau dargestellt. Kehrt eine Trajektorie zum Nullpunkt des Koordinatensystems zurück, ist dies durch eine Punktmarkierung gekennzeichnet.



Die berechneten Trajektorien unterscheiden sich bei den unterschiedlichen Feldkonfigurationen erheblich. Für den linearen Fall (a) kehren einige der Trajektorien teilweise mehrfach zu dem Nullpunkt des Koordinatensystems zurück (Punktmarkierungen). Dies ermöglicht eine Wechselwirkung mit dem Ursprungion, welches sich aufgrund seiner um 3-4 Größenordnungen höheren Masse immer noch annähernd im Nullpunkt befindet. Eine solche Rückkehr kann für ein zirkular polarisiertes Feld (b) ohne Anfangsgeschwindigkeit des Elektrons nicht stattfinden. Dem gegenüber wirkt das orthogonale Zwei-Farben-Feld als Filter, der eine Rückkehr nur für spezifische Ionisationszeiten  $t_i$  erlaubt. Die für eine Rückkehr zulässige Ionisationszeit hängt dabei von der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  ab, wie in Abbildung 2.1.3 dargestellt ist. Es werden die Trajektorien zu denselben Ionisationszeiten  $t_i$  wie in Abbildung 2.1.2 (c) für verschiedene relative Phasen  $\varphi_{rel} = -21.5^\circ$  (Abb. 2.1.3 (a)),  $\varphi_{rel} = -5.5^\circ$  (b) und  $\varphi_{rel} = 0^\circ$  (c) gezeigt. In (a), (b) und (c) führt jeweils eine andere Ionisationszeit (gelbe, grüne und türkise Trajektorie) zu einer Rückkehr des Elektrons zum Ursprungion. Zudem ändert sich die Richtung, aus der das Elektron zurückkehrt. Es lassen sich auch relative Phasen finden, für die keine Rückkehr möglich ist. Da sich orthogonale Zwei-Farben-Felder im Experiment sehr einfach erzeugen lassen (siehe Abschnitt 4.1), ist diese Feldkonfiguration ausgezeichnet dafür geeignet, die Elektronendynamiken in starken Laserfeldern mit Subzyklen-Genauigkeit zu untersuchen bzw. zu beeinflussen.

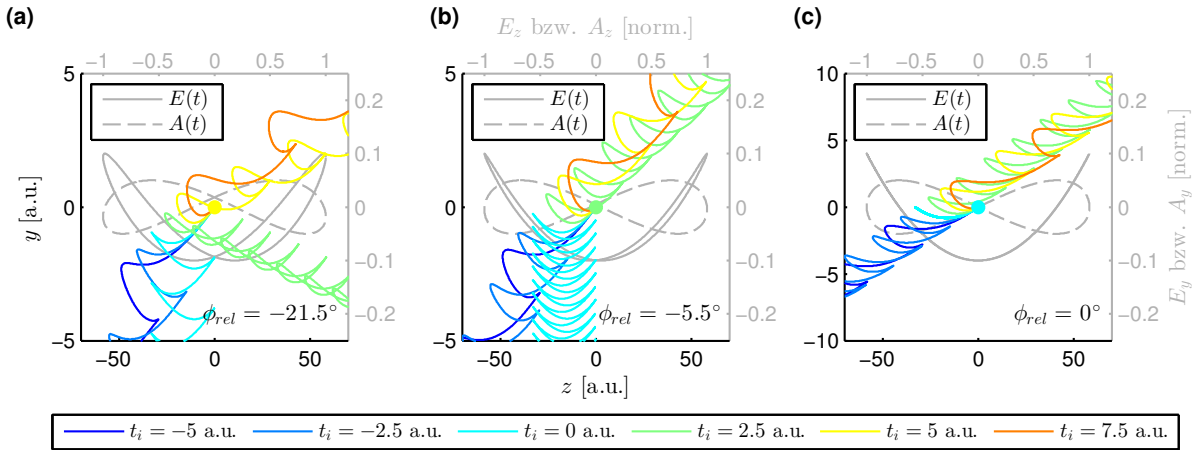


Abbildung 2.1.3: Elektronen-Trajektorien in einem orthogonalen Zwei-Farben-Feld ( $E_z = E_0 \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$ ,  $E_y = E_0 \epsilon \cos(2\omega t + \varphi_{rel}) \mathbf{e}_y$ ) für verschiedene relative Phasen  $\varphi_{rel}$ . Die Serie der Ionisationszeiten  $t_i$ ,  $E_0$ ,  $\omega$  und  $\epsilon$  sind identisch zu Abb. 2.1.2. Für verschiedene relative Phasen kehren unterschiedliche Trajektorien zum Nullpunkt des Koordinatensystems zurück.

Für Elektronen, die zum Ursprungion zurückkehren, können einige nützliche Werte definiert werden. Die Rückkehrzeit  $t_r$ , die Flugzeit  $\tau = t_r - t_i$  und der Rückkehrimpuls  $\mathbf{p}_r = m_e \mathbf{v}(t_r, t_i) = -q [\mathbf{A}(t_r) - \mathbf{A}(t_i)] + \mathbf{v}_0$ . Um die Rückkehrzeit  $t_r$  zu ermitteln, muss entsprechend Gleichung 2.1.19

$$\mathbf{r}(t_r, t_i) = -\frac{q}{m_e} \cdot [\boldsymbol{\alpha}(t_r) - \boldsymbol{\alpha}(t_i)] + \left[ \frac{q}{m_e} \mathbf{A}(t_i) + \mathbf{v}_0 \right] (t_r - t_i) + \mathbf{r}_0 = 0 \quad (2.1.24)$$

gelten. Unter Vernachlässigung von  $\mathbf{v}_0$  und  $\mathbf{r}_0$  ist eine grafische Lösung von Gleichung 2.1.24 möglich. Es gilt mit  $q = -1$ ,  $m_e = 1$

$$\boldsymbol{\alpha}(t_r) = \boldsymbol{\alpha}(t_i) + \dot{\boldsymbol{\alpha}}(t_i) (t_r - t_i). \quad (2.1.25)$$

Da  $\alpha(t)$  (Gl. 2.1.20) sowie  $\mathbf{E}(t)$  (Gl. 2.1.15) abgesehen von ihrer Amplitude identisch sind gilt auch

$$\mathbf{E}(t_r) = \mathbf{E}(t_i) + \dot{\mathbf{E}}(t_i)(t_r - t_i). \quad (2.1.26)$$

Mögliche Rückkehrzeitpunkte  $t_r$  sind also die Schnittpunkte der bei  $\mathbf{E}(t_i)$  angelegten Tangente mit  $\mathbf{E}(t)$ , wie in Abbildung 2.1.4 für ein linear polarisiertes Laserfeld ( $\omega = 0.057$  a.u.) analog zu [78] dargestellt ist. Die blaue Tangente gehört zu  $t_i = 2.5$  a.u. und die rote zu  $t_i = 5$  a.u.. Je nach Ionisationszeitpunkt lassen sich auch mehrere Schnittpunkte finden. Es ist offensichtlich, dass innerhalb einer Laserperiode  $T$  nur Ionisationszeiten im Bereich mit abfallender Feldstärke  $|\mathbf{E}(t_i)| \geq |\mathbf{E}(t_i + \Delta t)|$  ( $0 \leq t_i/T \leq 0.25$  und  $0.5 \leq t_i/T \leq 0.75$ ) zu Tangenten mit einem oder mehreren Schnittpunkten führen können.

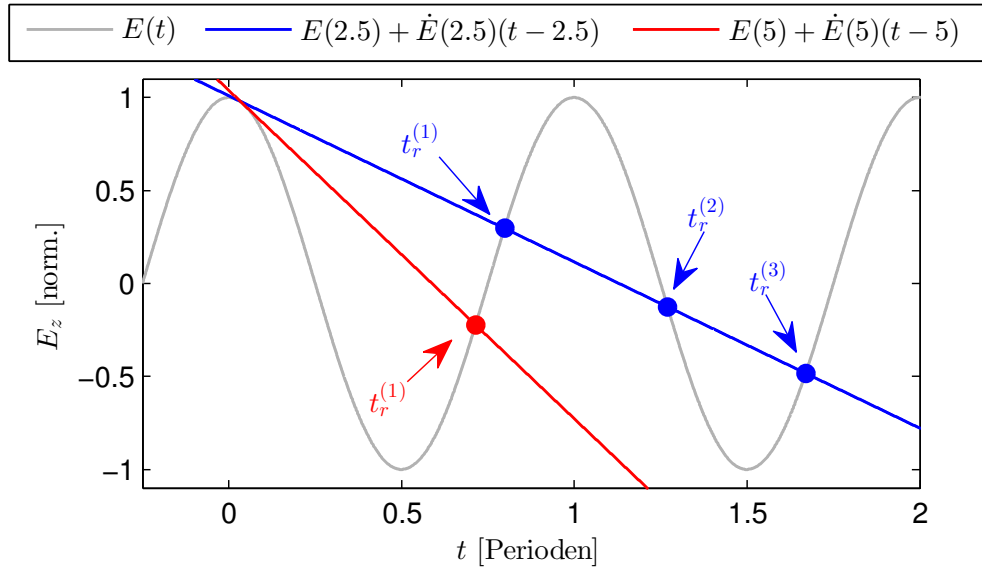


Abbildung 2.1.4: Grafische Lösung von Gleichung 2.1.24 mit  $\mathbf{v}_0 = 0$  und  $\mathbf{r}_0 = 0$ . Die Rückkehrzeitpunkte einer Elektronen-Trajektorie zum Nullpunkt des Koordinatensystem kann durch Ermittlung der Schnittpunkte der bei  $\mathbf{E}(t_i)$  an das elektrische Feld angelegten Tangente mit  $\mathbf{E}(t)$  ermittelt werden. Dies ist am Beispiel zweier Ionisationszeiten  $t_i = 2.5$  a.u. (rot) und  $t_i = 5$  a.u. (blau) dargestellt.

Da eine grafische Lösung für Simulationen nicht praktikabel ist, wird die Trajektorie zu jedem  $t_i$  numerisch auf Rückkehr-Ereignisse untersucht. Abbildung 2.1.5 zeigt im oberen Teil die Trajektorien für Ionisationszeiten im Bereich  $0 \leq t_i/T \leq 0.25$  bis zu ihrer ersten Rückkehr  $t_r^{(1)}$  zum Nullpunkt. Die farbliche Zuordnung entspricht der jeweiligen auf  $U_p$  normierten Rückkehrenergie. Im unteren Teil ist das elektrische Feld  $\mathbf{E}(t)$  dargestellt. Die zu den Trajektorien gehörenden Ionisationszeiten  $t_i$  sind durch senkrechte Linien und die Rückkehrzeiten durch gestrichelte senkrechte Linien markiert. Mit zunehmender Ionisationszeit  $t_i$  nimmt zunächst die Rückkehrenergie von Null beginnend bis zu einem Maximalwert von  $3.17 U_p$  (hervorgehobene Trajektorie) zu, um dann für noch spätere  $t_i$  wieder auf Null abzusinken. Trajektorien mit einer längeren Flugzeit als die Trajektorie mit der höchsten Rückkehrenergie werden als lange Trajektorien und Trajektorien mit kürzerer Flugzeit als kurze Trajektorien bezeichnet. Für jede Rückkehrenergie kleiner  $3.17 U_p$  lässt sich sowohl eine lange als auch eine kurze Trajektorie finden.

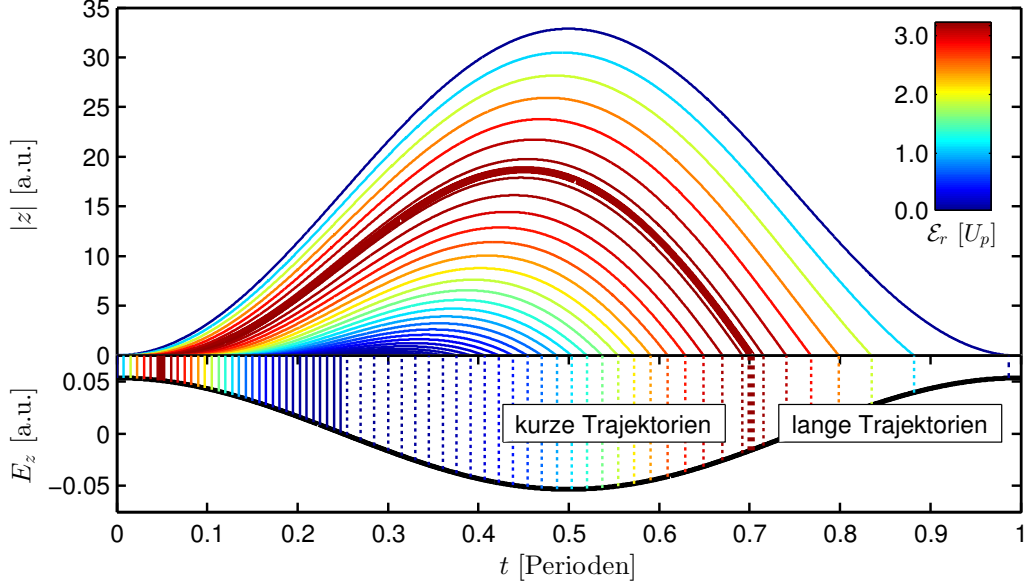


Abbildung 2.1.5: Rückkehrenergien der Elektronen-Trajektorien in einem linear polarisierten Laserfeld ( $E_z = 0.0534$  a.u.,  $\omega = 0.057$  a.u.) für Ionisationszeiten im Bereich  $0 \leq t_i/T \leq 0.25$ . Im oberen Bereich ist die Trajektorie zwischen Ionisationszeit  $t_i$  und Rückkehrzeit  $t_r$  dargestellt. Um die Zeitachse besser abzulesen sind  $t_i$  und  $t_r$  durch die senkrechten Linien im unteren Bereich im Bezug zum elektrischen Feld  $E_z$  verdeutlicht. Die gestrichelten Linien gehören zu den Rückkehrzeiten  $t_r$ . Die Farbe der Trajektorien wird entsprechend der auf  $U_p$  normierten Rückkehrenergie zugeordnet. Die maximale Rückkehrenergie ist  $3.17 U_p$ . Trajektorien mit längerer oder kürzerer Flugzeit  $\tau = t_r - t_i$  als die hervorgehobene Trajektorie, werden als „lange Trajektorien“ bzw. „kurze Trajektorien“ bezeichnet. (Abb. nach [79, 80])

## Ionen-Elektronen-Wechselwirkung

Durch die für einige Ionisationszeiten  $t_i$  mögliche Rückkehr der Elektronentrajektorie zum Ursprungion ist eine Ionen-Elektronen-Wechselwirkung über mehrere verschiedene Wechselwirkungsprozesse möglich. Zum einem kann das Elektron wieder mit dem Ursprungion rekombinieren, zum anderem kann elastische und inelastische Streuung am Ion stattfinden. Findet eine Rekombination statt, wird die Bindungsenergie  $\mathcal{E}_{Ip}$  und die vom Laserfeld erhaltene kinetische Energie des Elektrons (die Rückkehrenergie  $\mathcal{E}_r$ ) in Form hochenergetischer Photonen ( $\mathcal{E}_{ph} = \mathcal{E}_{Ip} + \mathcal{E}_r$ ) abgestrahlt (HHG) [17, 80, 81]. Bei der inelastischen Streuung gibt das Elektron einen Teil seiner Energie an ein weiteres bzw. mehrere Schalelektronen aus dem Ion ab, wodurch diese ionisiert werden können (nichtsequenzielle Doppel- bzw. Mehrionisation) [18, 19, 82]. Im Vergleich dazu bleibt bei einer elastischen Streuung die kinetische Energie des Elektrons erhalten. Durch Rückstreuung des Elektrons am Ion und einer anschließenden weiteren Beschleunigung im Laserfeld können jedoch deutlich höhere kinetische Energien (bis  $10 U_p$ ) erreicht werden, als ohne diese Wechselwirkung möglich wäre [20, 83]. Für den finalen Impuls gilt

$$\mathbf{p}_f = -\mathbf{A}(t_r) + \mathbf{p}_{streu}, \quad (2.1.27)$$

wobei  $\mathbf{p}_{streu}$  der Impuls nach der elastischen Streuung ist. Es gilt dabei  $|\mathbf{p}_r| = |\mathbf{p}_{streu}|$ . Die verschiedenen Wechselwirkungsprozesse konkurrieren miteinander und die Wahrscheinlichkeit

jedes Prozesses hängt von seinem totalen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{total}$  ab. Eine Untersuchung der Zählraten für nichtsequenzielle Doppel- bzw. Mehrfachionisation zeigt, dass die Raten etwa drei Größenordnungen geringer sind als bei der Einfachionisation [84]. Deshalb kann die inelastische Streuung für die theoretische Beschreibung der in dieser Arbeit gemessenen Photoelektronenimpulsverteilungen vernachlässigt werden. Im folgenden Abschnitt wird daher nur auf die elastische Streuung eingegangen.

## 2.2 Elastische Streuung

Um die elastische Streuung der zurückkehrenden Elektronen am Ion zu beschreiben, ist es zunächst sinnvoll, den differentiellen Wirkungsquerschnitt  $d\sigma/d\Omega$  zu betrachten. Dieser ist in Abbildung 2.2.1 anhand einer klassischen Betrachtung der Streuung von Elektronen an einem attraktiven Coulomb-Potenzial dargestellt. Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  beschreibt die Fläche eines Rings mit Radius  $b$  (der Stoßparameter) und infinitesimaler Breite  $db$ . Teilchen, die durch das Flächenelement  $d\sigma = b \cdot d\varphi db$  stoßen, werden in den Raumwinkel  $d\Omega = \sin(\theta) d\theta d\varphi$  gestreut. Unter Annahme eines ebenen Welle gleichenden, homogen verteilten Teilchenstroms und eines kugelsymmetrischen Potenzials (Streuung unabhängig von  $\varphi$ ), gibt der differentielle Wirkungsquerschnitt  $d\sigma/d\Omega(\theta, \mathbf{p}_r)$  die Winkelverteilung für den Streuwinkel  $\theta$  an.

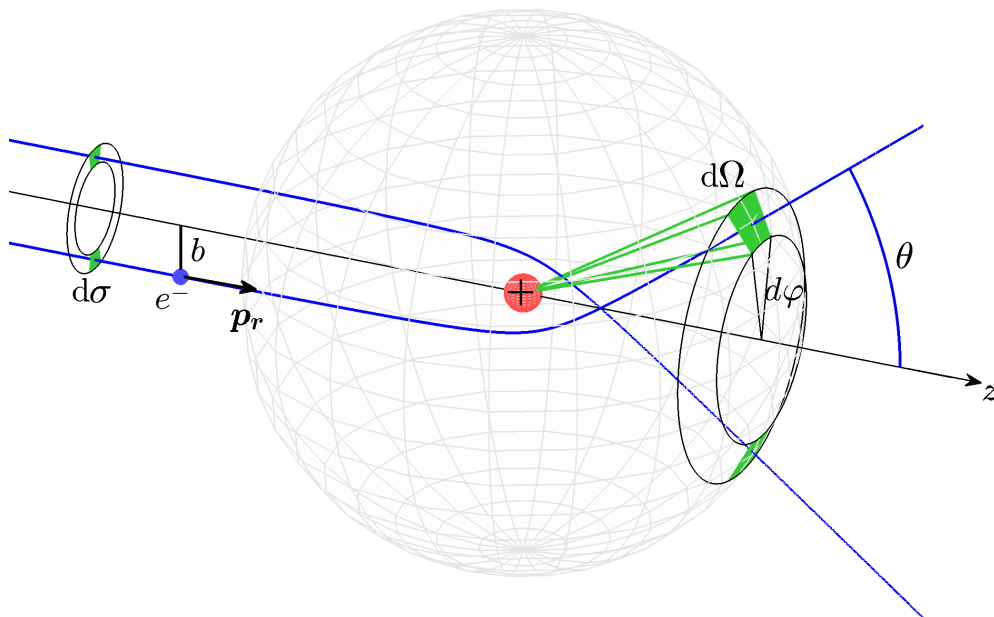


Abbildung 2.2.1: Schema der elastischen Streuung eines Elektrons in dem attraktiven Coulomb-Potenzial eines Ions. Die Elektronen-Ionen-Wechselwirkung lässt sich über den differentiellen Wirkungsquerschnitt  $d\sigma/d\Omega$  beschreiben. Dazu wird der Stoßparameter  $b$  und der Streuwinkel  $\theta$  eingeführt. Ein Elektron, das das Flächenelement  $d\sigma = b \cdot d\varphi db$  des Wirkungsquerschnitts  $\sigma$  passiert, wird im Raumwinkel  $d\Omega = \sin(\theta) d\theta d\varphi$  gestreut. Das Verhältnis  $d\sigma/d\Omega$  hängt dabei sowohl vom Impuls des Elektrons  $\mathbf{p}_r$ , als auch vom Streuwinkel  $\theta$  ab.

Das Integral über alle Raumwinkel  $d\Omega$  ergibt den totalen Wirkungsquerschnitt

$$\sigma_{total} = \oint_{4\pi} \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \frac{d\sigma}{d\Omega} \sin\theta d\theta d\varphi, \quad (2.2.1)$$

der üblicherweise in Barn ( $1 \text{ b} = 10^{-24} \text{ cm}^2$ ) angegeben wird und die effektive Streufläche des Potentials darstellt. Hier werden atomare Einheiten verwendet. Die Fläche wird also in Vielfachen des quadrierten Bohr'schen Atomradius  $a_0^2$  angegeben. Für die in Abbildung 2.2.1 schematisch dargestellte Coulomb-Streuung gilt die Rutherford'sche Streuformel

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta, \mathbf{p}_r) = \frac{4(Z_1 Z_2)^2}{[4\mathbf{p}_r^2 \sin^2(\theta/2)]^2}. \quad (2.2.2)$$

$Z_1$  und  $Z_2$  sind die Ladungszahlen der beteiligten Ladungsträger. Es wird ersichtlich, dass  $\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta, \mathbf{p}_r)$  für  $\theta \rightarrow 0$  divergiert und somit  $\sigma_{total}$  gegen unendlich geht. Dies liegt an der langen Reichweite des Coulomb-Potentials  $V(r) = -Z/r$ , das auch für sehr große Distanzen ( $r \rightarrow \infty$ ) nicht verschwindet. Um einen endlichen totalen Wirkungsquerschnitt und einen zusätzlichen Anpassungsparameter zu erhalten, wird die Elektronen-Ionen-Streuung als Streuung an einem abgeschirmten Coulomb-Potential, bzw. Yukawa-Potential beschrieben, wofür eine analytische Lösung existiert. Dieser Ansatz wurde bereits erfolgreich zur Beschreibung von Photoelektronenspektren in Zwei-Farben-Feldern angewendet [1, 85] und wird im folgendem Abschnitt näher erläutert.

### Elastische Streuung am Yukawa-Potential

Das Yukawa-Potential  $V(r) = -Z \cdot \exp[-\mu r]/r$  entspricht einem Coulomb-Potential, das um den Parameter  $\exp[-\mu r]$  ergänzt wird. Der Abschirmparameter  $\mu$  beeinflusst dabei die Reichweite  $\tau$  des Potentials, wobei ungefähr  $\tau \approx 1/\mu$  gilt. Der differentielle Wirkungsquerschnitt

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta, \mathbf{p}_r) = \frac{4Z^2}{[\mu^2 + 4\mathbf{p}_r^2 \sin^2(\theta/2)]^2} \quad (2.2.3)$$

folgt mit der 1. Born'schen Näherung der Streuung einer ebenen Welle am Potential [85]. In Abbildung 2.2.2 ist die Abhängigkeit des differentiellen Wirkungsquerschnitts (DCS<sup>3</sup>)  $d\sigma/d\omega$ , des Potentials  $V$  und des totalen Wirkungsquerschnitts  $\sigma_{total}$  vom Abschirmparameter  $\mu$ , dem Streuwinkel  $\theta$  und des Rückkehrimpulses  $\mathbf{p}_r$  dargestellt. (a) zeigt, wie sich die Reichweite des Potentials  $V$  durch zunehmende Abschirmparameter  $\mu$  immer weiter verkürzt. Dies hat direkt zur Folge, dass der totale Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{total}$  für zunehmende  $\mu$  abnimmt (b). Der totale Wirkungsquerschnitt reduziert sich außerdem mit zunehmendem Rückkehrimpuls  $\mathbf{p}_r$ . Für den differentiellen Wirkungsquerschnitt  $d\sigma/d\Omega$  gelten dieselben Abhängigkeiten ((c), (d)). Weiterhin ist  $d\sigma/d\Omega$  noch vom Streuwinkel  $\theta$  abhängig und nimmt mit zunehmendem  $\theta$  stetig ab. Für  $\mu = 0$  geht das Yukawa-Potential in ein Coulomb-Potential über und der differentielle Wirkungsquerschnitt  $d\sigma/d\omega$  divergiert bei  $\theta = 0$  (c).

---

<sup>3</sup>engl.: differential cross section

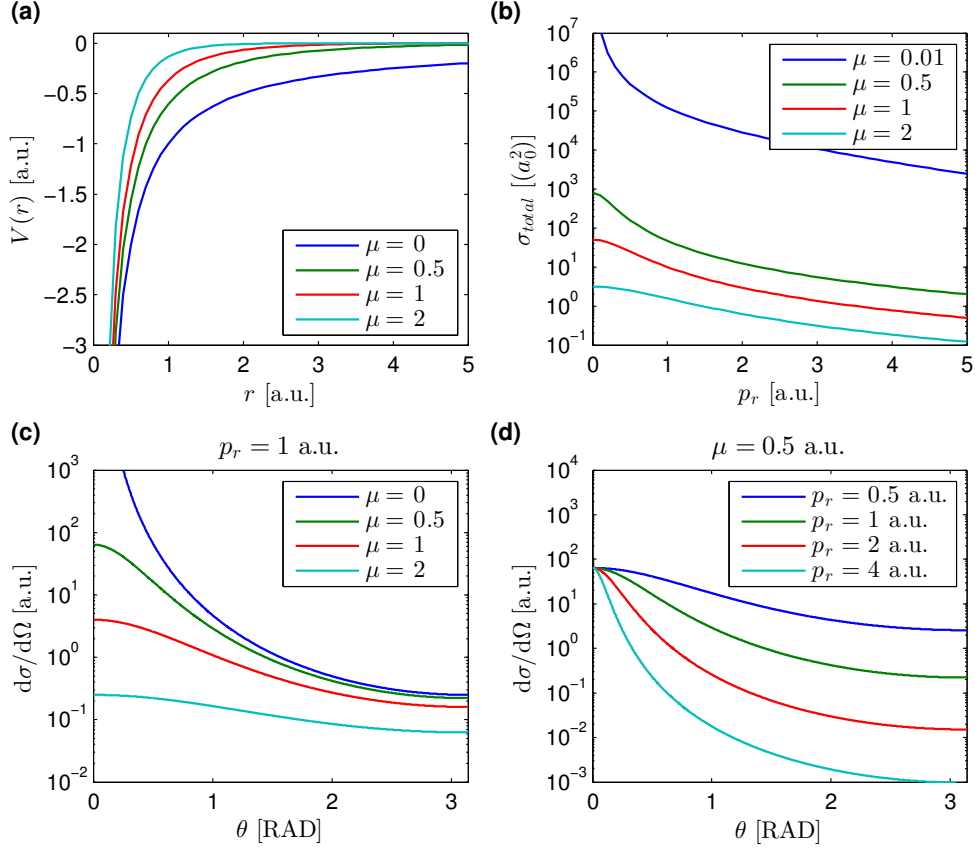


Abbildung 2.2.2: Variation des Yukawa-Potenzials  $V$  (a), des totalen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{total}$  (b) und des differentiellen Wirkungsquerschnitts  $d\sigma/d\Omega$  (c), (d) in Abhängigkeit von Rückkehrimpuls  $p_r$ , Streuwinkel  $\theta$  und Abschirmparameter  $\mu$  mit  $Z = 1$ . Für  $\mu = 0$  geht das Yukawa-Potenzial in ein Coulomb-Potenzial über, weshalb in diesem Fall  $d\sigma/d\Omega$  für  $\theta \rightarrow 0$  divergiert. Der differentielle Wirkungsquerschnitt nimmt mit zunehmendem Streuwinkel stetig ab (c), (d), wobei die Abnahme vom Abschirmparameter  $\mu$  und dem Rückkehrimpuls abhängt. Für kleinere  $\mu$  und größere Rückkehrenergie steigt somit die Wahrscheinlichkeit einer Streuung unter einem kleinen Streuwinkel  $\theta$  stark an. Der totale Wirkungsquerschnitt (b) steigt für kleinere  $\mu$  ebenfalls an und nimmt für zunehmende Rückkehrimpulse ab.

Zur weiteren Veranschaulichung werden die aus dem differentiellen Wirkungsquerschnitt resultierenden Streuverteilungen  $W_{DCS}(p_x, p_y, p_z)$  in Abbildung 2.2.3 dreidimensional dargestellt. Dazu wird zunächst die Streuverteilung

$$W_{DCS}(\mathbf{p}_r, \varphi_{streu}, \theta_{streu}) = \frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta_{streu}, \mathbf{p}_r) \cdot \sin(\theta) \Delta\varphi \cdot \Delta\theta \quad (2.2.4)$$

in Polarkoordinaten auf einem diskreten Winkelraster, das alle Raumwinkel abdeckt, berechnet. Eine Koordinatentransformation zu kartesischen Koordinaten ergibt einen Datensatz aller Streuvektoren

$$\mathbf{p}_{streu}(\mathbf{p}_r, \theta_{streu}, \varphi_{streu}) = |\mathbf{p}_r| \cdot \begin{pmatrix} \sin(\theta_{streu}) \cos(\varphi_{streu}) \\ \sin(\theta_{streu}) \sin(\varphi_{streu}) \\ \cos(\theta_{streu}) \end{pmatrix}, \quad (2.2.5)$$

die jeweils mit  $W_{DCS}(\mathbf{p}_r, \varphi_{streu}, \theta_{streu})$  zu gewichten sind. Die Einordnung und Gewichtung aller

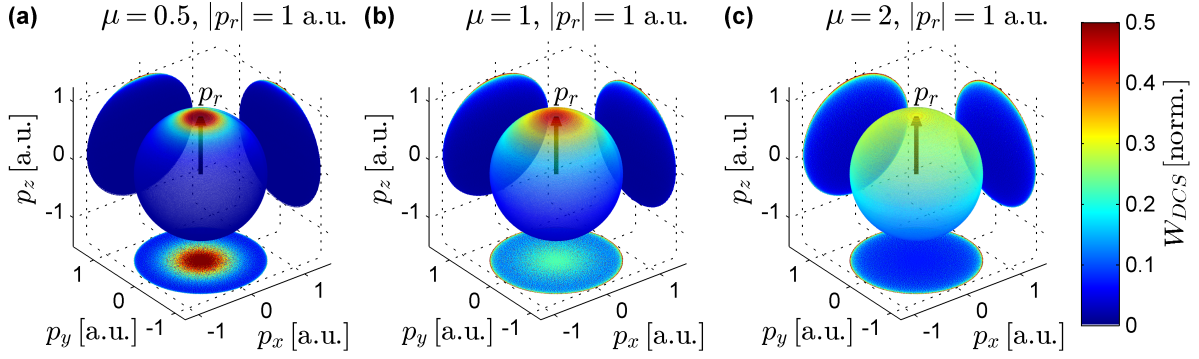


Abbildung 2.2.3: Normierte dreidimensionale Darstellung der auf einem kartesischen Gitter erfassten Impuls-Streuverteilung  $W_{DCS}(\mathbf{p}_r = 1, \varphi, \theta)$  für elastische Streuung an einem Yukawa-Potenzial mit verschiedenen Abschirmparametern  $\mu$ . Die Impulsverteilung wird außerdem als Projektion auf die verschiedenen Raumebenen normiert dargestellt. Bei der Projektion auf die  $x$ - $y$ -Ebene ist insbesondere die Verlagerung der Verteilung aus dem Zentrum ( $p_x = 0, p_y = 0$ ) hin zum Rand bemerkenswert. Während für  $\mu = 0.5$  (a) der Schwerpunkt der Impulsverteilung um den Vektor des Rückkehrimpulses  $\mathbf{p}_r$  lokalisiert ist (kleine Streuwinkel), ist die Verteilung bei  $\mu = 2$  (c) deutlich homogener und kleine Streuwinkel werden nur geringfügig bevorzugt.

Streuvektoren auf einem kartesischen Gitter ergibt letztendlich die Verteilung  $W_{DCS}(p_x, p_y, p_z)$ . Die dreidimensionalen Streuverteilungen sind für  $|\mathbf{p}_r| = 1$  a.u. und  $\mu = 0.5$  (a),  $\mu = 1$  (b) und für  $\mu = 2$  dargestellt. Zusätzlich werden die Abel-Projektionen  $\int W_{DCS}(p_x, p_y, p_z) dp_x$ ,  $\int W_{DCS}(p_x, p_y, p_z) dp_y$  und  $\int W_{DCS}(p_x, p_y, p_z) dp_z$  auf die jeweilige Raumebene gezeigt. Die Verteilungen und Projektionen sind jeweils für sich auf Eins normiert, um eine gemeinsame Darstellung zu ermöglichen. Für  $\mu = 0.5$  ist der Schwerpunkt der Verteilung unter kleinen Streuwinkeln  $\theta_{streu}$  um den ursprünglichen Vektor des Rückkehrimpulses  $\mathbf{p}_r$  lokalisiert, während für  $\mu = 2$  die Verteilung deutlich homogener ausfällt. Dieser Übergang wird besonders deutlich, wenn die Projektion auf die  $x$ - $y$ -Ebene ( $\int W_{DCS}(p_x, p_y, p_z) dp_z$ ) betrachtet wird.

Auch wenn die Modellierung der Elektronen-Ionen-Wechselwirkung über elastische Streuung am Yukawa-Potenzial beachtliche Übereinstimmungen mit den gemessenen Photoelektronenimpulsverteilungen in dieser Arbeit aufweist (siehe Abschnitt 5.2), so sollte trotzdem der Gültigkeitsbereich der 1. Born'schen Näherung beachtet werden. Dieser setzt voraus, dass sich die gestreute Wellenfunktion nur wenig von der einlaufenden ebenen Welle unterscheidet. Dies ist jedoch nur für hohe Rückkehrimpulse und schwache Streupotenziale der Fall und wird in der Starkfeld-Laserphysik mit typischen Rückkehrenergien  $< 50$  eV nur mäßig erfüllt. Als Alternative können, sofern verfügbar, experimentell gemessene oder numerisch ermittelte Wirkungsquerschnitte verwendet werden.

## Numerisch ermittelte Streuquerschnitte

Abbildung 2.2.4 (a) zeigt einige differentielle Wirkungsquerschnitte, die der Software „NIST Electron Elastic-Scattering Cross-Section Database: Version 3.2“ [86] entnommen wurden. Die Software stellt mittels relativistischer Dirac-Partialwellenanalyse bestimmte Wirkungsquerschnitte für die elastische Streuung von Elektronen mit Energie 50 eV bis 300 keV bereit. Bei der in Abbildung 2.2.4 (a) für  $|\mathbf{p}_r| = 2$  a.u. ( $\sim 54$  eV) gezeigten differentielle Wirkungsquerschnitte

ten ist nur für Wasserstoff eine hohe Ähnlichkeit zum differentiellen Wirkungsquerschnitt des Yukawa-Potenzials zu erkennen. Für die Gase Neon und Xenon finden sich jedoch auffällige Minima und der differentielle Wirkungsquerschnitt steigt für große Streuwinkel wieder an. Die Minima werden durch Phasenverschiebungen höherer Ordnung zwischen den verschiedenen gestreuten Partialwellen verursacht [87]. Die Anzahl, Position und Tiefe hängt dabei stark von der Elektronenenergie und dem Atom ab [87]. Die dreidimensionale Darstellung der Streuverteilung von Xenon in Abbildung 2.2.4 (b) zeigt im Vergleich zu den Streuverteilungen des Yukawa-Potenzials einen deutlich strukturierten Verlauf.

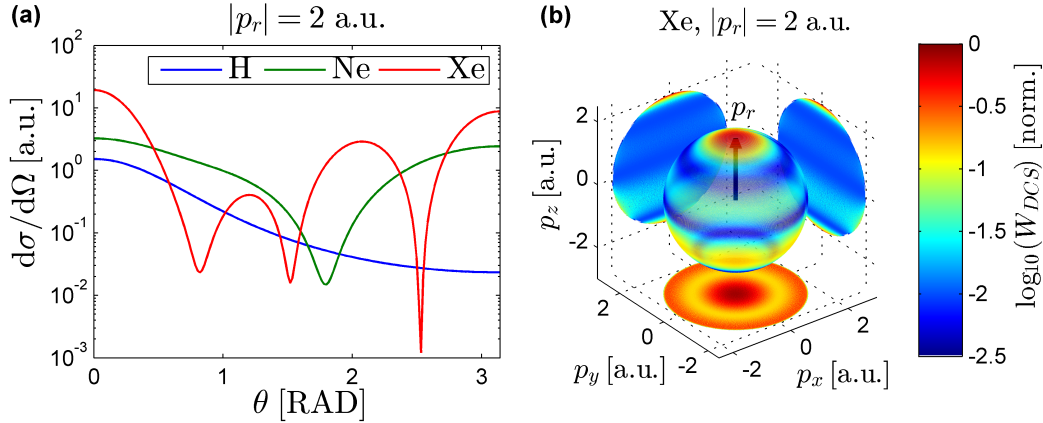


Abbildung 2.2.4: (a) Vergleich der aus [86] entnommen numerisch ermittelten differentiellen Wirkungsquerschnitte verschiedener Atome für  $|p_r| = 2$  a.u.. (b) Dreidimensionale Streuverteilung von Xenon analog zu Abbildung 2.2.3 in logarithmischer Darstellung.

Die Software stellt keine Wirkungsquerschnitte für niedrigere Elektronenenergien zur Verfügung und differentielle Wirkungsquerschnitte für bereits ionisierte Atome sind kaum verfügbar. Stattdessen werden in dieser Arbeit nach [88,89] numerische berechnete differentielle Wirkungsquerschnitte verwendet (zur Verfügung gestellt von D. Zille [90]). Für die Berechnung in Einzel-elektronennäherung wurden die in [64,91] gegebenen Modellpotenziale verwendet.

### Streuverteilung für beliebige Rückkehrwinkel

Die bisher gezeigten Streuverteilungen wurden stets für  $\mathbf{p}_r \parallel \mathbf{e}_z$  mit Rückkehrwinkel  $\theta_r = 0$  und  $\varphi_r = 0$  dargestellt. Auch zur Berechnung der Streuverteilungen mit beliebigem Rückkehrwinkel ist es einfacher, die Verteilung zunächst unter der Annahme  $\mathbf{p}_r \parallel \mathbf{e}_z$  zu berechnen und diese anschließend mithilfe der Drehmatrizen

$$R_y(\theta_r) = \begin{pmatrix} \cos \theta_r & 0 & \sin \theta_r \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \theta_r & 0 & \cos \theta_r \end{pmatrix}, R_z(\varphi_r) = \begin{pmatrix} \cos \varphi_r & -\sin \varphi_r & 0 \\ \sin \varphi_r & \cos \varphi_r & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.2.6)$$

in Richtung des tatsächlichen Rückkehrvektors auszurichten. Die Rückkehrwinkel sind dabei durch

$$\theta_r = \arccos\left(\frac{\mathbf{p}_r \cdot \mathbf{e}_z}{|\mathbf{p}_r|}\right), \varphi_r = \arctan\left(\frac{\mathbf{p}_r \cdot \mathbf{e}_y}{\mathbf{p}_r \cdot \mathbf{e}_x}\right) \quad (2.2.7)$$



gegeben. Jeder Streuvektor (Gl. 2.2.5) muss also zusätzlich mit den Drehmatrizen rotiert werden:

$$\mathbf{p}_{streu} = R_z(\varphi_r) R_y(\theta_r) \mathbf{p}'_{streu}(\theta_{streu}, \varphi_{streu}) \quad (2.2.8)$$

Dabei muss die Reihenfolge der Anwendung der Drehmatrizen eingehalten werden. Durch eine Zusammenfassung aller Streuvektoren zu einer Matrix

$$M = \begin{pmatrix} p_{x1} & p_{x2} & \cdots \\ p_{y1} & p_{y2} & \cdots \\ p_{z1} & p_{z2} & \cdots \end{pmatrix} \quad (2.2.9)$$

kann die Rotation aller Vektoren in Matlab sehr schnell durchgeführt werden.

## 2.3 Mathematische Beschreibung von Femtosekunden-Laserpulsen

Um Experimente mit Zwei-Farben-Felder durchzuführen, müssen beide Farben in der Interaktionszone zeitlich überlappen. Dazu müssen die unterschiedlichen Phasen- und Gruppengeschwindigkeiten beider Farbkomponenten bei der Transmission durch optische Elemente im Strahlengang des Lasers berücksichtigt werden. In Vorbereitung der Erzeugung von Zwei-Farben-Feldern (Abschnitt 4.1) folgt analog zu [92] eine kurze mathematische Beschreibung von kurzen Laserpulsen und ihrer Propagation durch optische Medien.

Ein linear polarisierter Laserpuls kann im wesentlichen über drei Größen beschrieben werden. Diese sind die zeitabhängige Einhüllende  $f(t)$ , die Träger- bzw. Zentralfrequenz  $\omega$  und die zeitabhängige Phase  $\phi(t)$ . Damit ist das elektrische Feld mit

$$E(t) = f(t) E_0 \cos(\omega t + \phi(t)) = f(t) E_0 e^{i(\omega t + \phi(t))} \quad (2.3.1)$$

gegeben.  $E_0$  ist die maximale Amplitude des  $E$ -Feldes. Wird eine Gauß-förmige Einhüllende angenommen, ergibt sich  $E(t) = \exp\left[-2 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau}\right)^2\right] \cdot E_0 \exp[i(\omega t + \phi(t))]$  (Abb. 2.3.1(a)), wobei  $\tau$  die zeitliche Dauer des Laserpulses ist. Die Pulsdauer ist dabei als die volle Halbwertsbreite der Laserleistung  $P(t) = P_0 \exp\left[-4 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau}\right)^2\right]$  mit  $P_0 = \frac{\mathcal{E}_{puls}}{\tau} \sqrt{\frac{4 \ln 2}{\pi}}$  definiert (Abb. 2.3.1(b)).  $\mathcal{E}_{puls}$  ist die Energie pro Laserpuls.

Durch eine Fourier-Transformation  $\tilde{E}(\omega') = \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \exp[-i\omega' t] dt$  kann der Laserpuls auch im Frequenzraum ausgedrückt werden:

$$\tilde{E}(\omega') = U(\omega') e^{i\varphi(\omega')} \quad (2.3.2)$$

$U(\omega')$  ist die spektrale Amplitude und  $\varphi(\omega')$  die spektrale Phase. Für Gauß'schen Puls ist  $U(\omega') = U_0 \exp\left[-2 \ln 2 \frac{(\omega' - \omega)^2}{\Delta\omega^2}\right]$  wobei für Frequenz- bzw. Bandbreite  $\Delta\omega \geq \frac{4 \ln 2}{\tau}$  gilt. Die Relation  $\tau \cdot \Delta\omega \geq 4 \ln 2$  berücksichtigt die Heisenberg'sche Unschärferelation der Quantenmechanik  $\Delta t \cdot \Delta E \geq \hbar$ . Erfüllt die Pulsdauer  $\tau = \frac{4 \ln 2}{\Delta\omega}$  spricht man von einem bandbreitenlimitierten Puls und die spektrale Phase  $\varphi(\omega')$  ist stets Null. Während die quadrierte spektrale Amplitude  $U(\omega')^2$  mittels eines Gitter-Spektrometers direkt messbar ist, kann die spektrale Phase nicht so

einfach bestimmt werden. Eine gängige Methode ist eine sogenannte SPIDER<sup>4</sup>-Messung [93, 94] über die die spektrale Phase rekonstruiert werden kann.

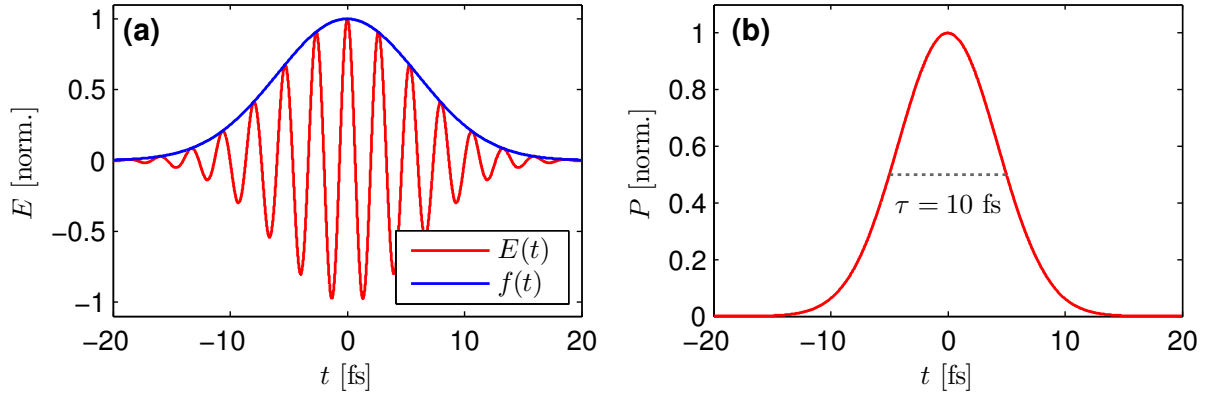


Abbildung 2.3.1: (a) Durch Gleichung 2.3.1 beschriebener Laserpuls mit Gauß'scher Einhüllenden. Die Kreisfrequenz des dargestellten Pulses entspricht einer Wellenlänge  $\lambda = 800$  nm. (b) Leistung  $P(t)$  des Laserpulses. Die Pulsdauer  $\tau$  ist über die volle Halbwertsbreite der Leistung definiert.

## Propagation durch Medium

Wenn ein Laserpuls durch ein optisches Medium (z.B. Wellenplatte, Kristall, Vakuumfenster, Luft etc.) der Länge  $L$  propagiert, wird das eingehende Feld  $\tilde{E}_{ein}(\omega')$  durch den frequenzabhängigen, komplexen Brechungsindex des Mediums  $\tilde{n}(\omega') = n_r(\omega') - in_i(\omega')$  beeinflusst. Das ausgehende Feld  $\tilde{E}_{aus}(\omega')$  kann mit

$$\tilde{E}_{aus}(\omega') = \tilde{E}_{ein}(\omega') \cdot e^{-i\frac{\omega'}{c}\tilde{n}(\omega')\cdot L} = \tilde{E}_{ein}(\omega') \cdot e^{-i\frac{\omega'}{c}n_r(\omega')\cdot L} \cdot e^{-\frac{\omega'}{c}n_i(\omega')\cdot L} \quad (2.3.3)$$

beschrieben werden. Während  $n_i(\omega')$  die frequenzabhängige Absorption und Streuung im Medium beschreibt, führt  $n_r(\omega')$  zu einer Verschiebung der spektralen Phase um

$$\varphi(\omega') = -\beta(\omega')L, \quad (2.3.4)$$

wobei  $\beta(\omega') = \frac{\omega'}{c}n_r(\omega')$  ist.  $\beta$  ist die Propagationskonstante, die die Phasenverschiebung pro Längeneinheit angibt.

Eine Taylor-Entwicklung von  $\beta$  um die Trägerfrequenz  $\omega$  ergibt

$$\beta(\omega') = \beta(\omega) + \left. \frac{d\beta}{d\omega'} \right|_{\omega} (\omega' - \omega) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2\beta}{d\omega'^2} \right|_{\omega} (\omega' - \omega)^2 + \sum_{m=3}^{\infty} \frac{1}{m!} \left. \frac{d^m\beta}{d\omega'^m} \right|_{\omega} (\omega' - \omega)^m, \quad (2.3.5)$$

wobei die einzelnen Terme in unterschiedlicher Beziehung zur zeitabhängigen Pulsform  $E(t)$  stehen.

<sup>4</sup>engl.: spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction

Der Term 0. Ordnung steht in Beziehung zur Phasengeschwindigkeit der Trägerfrequenz

$$v_p(\omega) = \frac{\omega}{\beta(\omega)} = \frac{c}{n_r(\omega)}, \quad (2.3.6)$$

während der Term 1. Ordnung in Beziehung zur Gruppengeschwindigkeit

$$v_g(\omega) = \frac{1}{\left. \frac{d\beta}{d\omega'} \right|_{\omega}} \quad (2.3.7)$$

der Einhüllenden des Laserpulses steht.

Der Term 2. Ordnung ist ein Dispersionsterm, der als Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD<sup>5</sup>) bezeichnet wird:

$$\text{GVD}(\omega) = \left. \frac{d^2\beta}{d\omega'^2} \right|_{\omega}. \quad (2.3.8)$$

Er führt zu zeitlichen Verbreiterung des ausgehenden Laserpulses. Für einen bandbreitenlimitierten Gauß-förmigen Puls gilt

$$\tau_{aus} = \tau_{ein} \sqrt{1 + \left( 4 \ln 2 \frac{\text{GVD} \cdot L}{\tau_{ein}^2} \right)^2}. \quad (2.3.9)$$

Es ist üblich, bei optischen Medien die Gruppenverzögerungsdispersion (GDD<sup>6</sup>) mit  $\text{GDD} = \text{GVD} \cdot L$  in der Einheit  $\text{fs}^2$  anzugeben. Je nach Frequenz und Material kann die Gruppenverzögerungsdispersion sowohl negative als auch positive Werte annehmen, sodass optische Elemente mit positiven GDD-Werten durch Elemente negativer GDD-Werte kompensiert werden können.

---

<sup>5</sup>engl.: group velocity dispersion

<sup>6</sup>engl.: group delay dispersion

### 3 Erweiterte semiklassische Simulation von Photoelektronenspektren

Das in Abschnitt 2.1 dargelegte semiklassische Drei-Stufen-Modell der Starkfeld-Laserphysik bietet einen einfachen Ansatz, das Verhalten von Atomen und kleinen Molekülen in starken linear polarisierten Laserfeldern äußerst anschaulich und intuitiv zu beschreiben. Aufgrund der Zylindersymmetrie von Photoelektronenspektren in linear polarisierten Laserfeldern wird jedoch häufig auf eine vollständige dreidimensionale Betrachtung verzichtet. Für die in dieser Arbeit verwendeten orthogonalen Zwei-Farben-Felder ist jedoch eine dreidimensionale Betrachtung aufgrund des Bruchs der Zylindersymmetrie unverzichtbar. Auch wird die Rückstreuung von Elektronen meist nicht berücksichtigt. Um die Rückstreuung zu beschreiben, wird stattdessen häufig das Modell der sogenannten Starkfeld-Approximation verwendet [31, 78, 95, 96], welches als die Quantenversion des Drei-Stufen-Modells betrachtet werden kann.

In diesem Kapitel wird eine in dieser Arbeit verwendete semiklassische Simulation eines erweiterten Drei-Stufen-Modells erläutert. Das Drei-Stufen-Modell wird dabei in einer vollständigen dreidimensionalen Betrachtung um die Elektronenstreuung erweitert, wobei auch Streueignisse höherer Ordnung betrachtet werden. Diese treten auf, wenn die Trajektorie eines Elektrons mehrmals zum Ursprung zurückführt. Die Simulation unterstützt dabei beliebige Laserfeldkonfigurationen.

Der Code dieser Simulation baut auf einer von Max Möller entwickelten zweidimensionalen Simulation für linear polarisierte Laserfelder [97] auf. Die vorgenommenen Modifikationen beziehen sich auf

1. Implementierung der Berechnung der Elektronentrajektorien für dreidimensionale Felder
2. Elektronenstreuung in drei Dimensionen
3. Berücksichtigung von Aufzehrungseffekten bei Streuung höherer Ordnung

Weiterhin wurde die Struktur der Simulation so verändert, dass anstatt einzelner Elektronentrajektorien für jede Ionisationszeit  $t_i$  komplette Elektronenverteilungen berechnet werden. Dies ist für eine dreidimensionale Betrachtung von Vorteil, da für ein Streueignis eines zurückkehrenden Elektrons sofort die gesamte Streuverteilung  $W_{DCS}$  auf einem Raster von etwa  $2 \cdot 10^5$  Raumwinkeln  $d\Omega$  ermittelt wird. Verglichen dazu würde eine typische Monte-Carlo-Simulation für jedes Rückkehrereignis nur eine Trajektorie mit einem zufälligen Raumwinkel berechnen. Um die vollständige Streuverteilung zu einer einzelnen Ionisationszeit  $t_i$  zu erhalten, müsste die Monte-Carlo-Simulation aufgrund der zufälligen Raumwinkel eine erheblich größere Anzahl an Trajektorien berechnen. Für nicht linear polarisierte Felder ist zudem eine Elektronenrückkehr deutlich unwahrscheinlicher (siehe z. B. Abb. 2.1.3), weshalb eine typische Monte-Carlo-Simulation zu viele Trajektorien berechnen müsste um anwendbar zu sein. Die direkte Berechnung vollständiger

Verteilungen entspricht dagegen einer Monte-Carlo-Simulation mit ausreichend vielen (unendlich) berechneten Trajektorien, bei der die Wahrscheinlichkeitsverteilung über das Gesetz der großen Zahlen perfekt angenähert wird. Für lange Laserpulse genügt es außerdem, die Berechnungen nur für Ionisationszeiten innerhalb einer Laserperiode durchzuführen, wenn über den Laserpuls keine signifikante Entleerung des Grundzustandes auftritt. Dieser Ansatz reduziert die Berechnungszeit erheblich, sodass je nach Impuls und Zeitauflösung innerhalb von wenigen Minuten vollständige Photoelektronenspektren simuliert werden können.

Es folgt eine detaillierte Beschreibung der semiklassischen Simulation bei der eine ähnliche Notation wie in [71,97] verwendet wird.

### 3.1 Struktur der Simulation

In der durchgeführten semiklassischen Simulation wird die gesamte Photoelektronenimpulsverteilung  $W_{GES}(\mathbf{p})$ , d. h. die Wahrscheinlichkeit ein Elektron bei Impuls  $\mathbf{p}$  aufzufinden, ähnlich des Ansatzes in [1,98] als die Superposition der Beiträge von direkten Elektronen (Elektronen, die nicht mit dem Ion wechselwirken)  $W_{DIR}(\mathbf{p})$  und der am Ion gestreute Elektronen  $W_{STREU}(\mathbf{p})$  betrachtet. Daher kann die gesamte Photoelektronenimpulsverteilung als die inkohärente Summe

$$W_{GES}(\mathbf{p}) = W_{DIR}(\mathbf{p}) + W_{STREU}(\mathbf{p}), \quad (3.1.1)$$

ausgedrückt werden. Nachfolgend wird  $W_{GES}(\mathbf{p})$  nur noch mit  $W(\mathbf{p})$  bezeichnet. Jeder Term stellt die Summe der Beiträge aller Ionisationszeiten  $t_i$  dar. Für die Verteilung direkter Elektronen gilt

$$W_{DIR}(\mathbf{p}) = \sum_{t_i^{dir}} W_i(t_i^{dir}) W_{dir}(\mathbf{p}, t_i^{dir}). \quad (3.1.2)$$

Hierbei wird über alle Ionisationszeiten  $t_i^{dir}$ , bei denen ein direkter Anteil  $W_{dir}$  (Erläuterung folgt in Abschnitt 3.4) vorkommt, summiert. Es wird außerdem mit der Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i^{dir})$  gewichtet.

Für die Verteilung gestreuter Elektronen  $W_{STREU}$  wird über alle Ionisationszeiten  $t_i^{streu}$ , bei der eine Rückkehr des Elektrons zum Ursprungion möglich ist, summiert. Hierbei muss zusätzlich beachtet werden, dass sich zu einer Ionisationszeit  $t_i^{streu}$  in manchen Fällen mehrere mögliche Rückkehrzeiten  $t_r$  finden lassen, die zu unterschiedlichen Streuverteilungen  $W_{DCS}$  (siehe Abschnitt 3.3) führen. Es folgt

$$W_{STREU}(\mathbf{p}) = \sum_{t_i^{streu}} \sum_{t_r} W_i(t_i^{streu}) W_r(t_i^{streu}, t_r) W_{DCS}(\mathbf{p}, t_r), \quad (3.1.3)$$

wobei zusätzlich zur Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i^{streu})$  mit  $W_r(t_i^{streu}, t_r)$  ein Wichtungsparameter für die Streuwahrscheinlichkeit des jeweiligen Rückkehrereignis eingeführt wird.

In der Simulation wird  $W_{DIR}(\mathbf{p})$  und  $W_{STREU}(\mathbf{p})$  berechnet, indem für diskrete Ionisationszeiten  $t_i$  jeweils  $W_{dir}(\mathbf{p}, t_i)$  und, falls Streuung möglich ist,  $W_{DCS}(\mathbf{p}, t_r)$  berechnet und entsprechend Gleichung 3.1.2 und 3.1.3 addiert werden. Die Simulation läuft dabei wie in dem in Abbildung 3.1.1 dargestellten Diagramm ab.

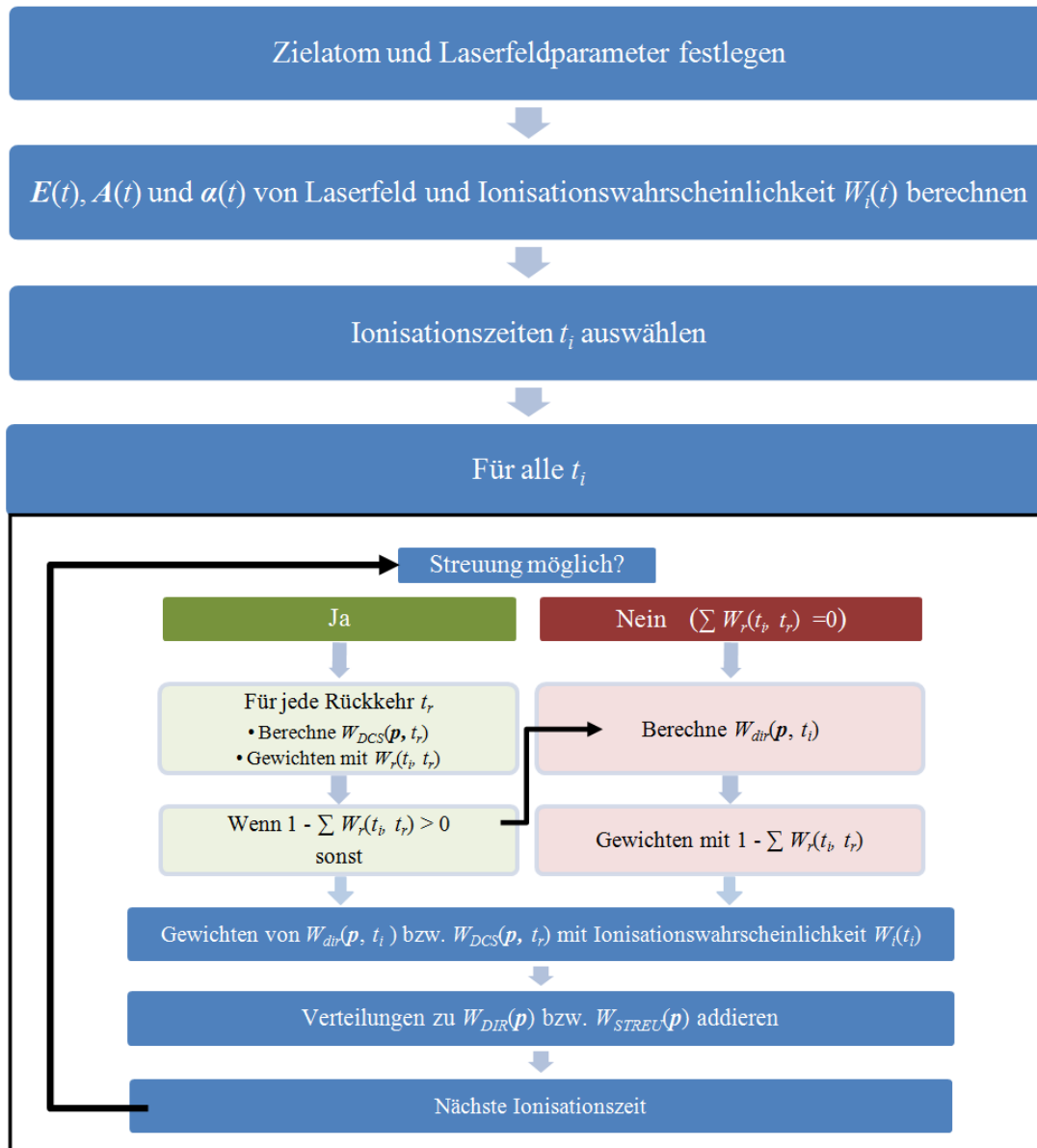


Abbildung 3.1.1: Ablaufdiagramm der Simulation des erweiterten semiklassischen Drei-Stufen-Modells

Zunächst werden die relevanten Parameter wie Zielatom und Laserparameter (Wellenlänge, Intensität, etc.) festgelegt und die Feldvektoren  $\mathbf{E}(t)$ ,  $\mathbf{A}(t)$  und  $\boldsymbol{\alpha}(t) = \int_{-\infty}^t \mathbf{A}(t') dt'$  sowie die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t)$  (Gl. 2.1.7) für einen festgelegten Zeitbereich (d. h. über gesamten Laserpuls) mit Schrittweite  $\Delta t$  berechnet. Anschließend werden Ionisationszeiten  $t_i$  von Interesse ausgewählt, für welche die Impulsverteilungen berechnet werden. Hier kann beispielsweise ein Schwellenwert (z. B.  $W_i(t_i) \stackrel{!}{\geq} \max(W_i(t)) \cdot 10^{-7}$ ) für die Ionisationswahrscheinlichkeit gesetzt oder nur ein Bereich des Laserpulses ( $0 \leq t_i \leq T$ ) ausgewählt werden. Die Möglichkeit einzelne Zeitbereiche zu selektieren ist sehr nützlich, um die zeitliche Dynamik von Strukturen der Elektronenimpulsverteilungen zu untersuchen.

Für die ausgewählten Ionisationszeiten  $t_i$  wird jeweils geprüft, ob Streuung stattfindet. Falls Streuung möglich ist, wird  $W_{DCS}(\mathbf{p}, t_r)$  für jede mögliche Rückkehrzeit  $t_r$  berechnet und mit der Streuwahrscheinlichkeit  $0 \leq W_r(t_i, t_r) \leq 1$  gewichtet. Wenn  $1 - \sum_{t_r} W_r(t_i, t_r) \geq 0$  gilt, wird

zusätzlich ein direkter Anteil  $W_{dir}(\mathbf{p}, t_i)$  berechnet, der mit  $1 - \sum_{t_r} W_r(t_i, t_r)$  gewichtet wird. Ist keine Streuung möglich, wird nur  $W_{dir}(\mathbf{p}, t_i)$  mit Wichtungsfaktor 1 berechnet. Die berechneten und gewichteten Verteilungen werden abschließend mit der jeweiligen Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i)$  gewichtet und entsprechend zu  $W_{DIR}(\mathbf{p})$  und  $W_{STREU}(\mathbf{p})$  addiert.

Die Berechnung der Feldvektoren und der Verteilungen wird im folgenden detailliert erläutert.

## 3.2 Berechnung der Feldvektoren

In der Simulation können beliebig definierte an- und abschwelende Laserfelder  $\mathbf{E}(t)$  verwendet werden. Dabei wird die Zeitabhängigkeit der Amplitude  $E_0$  des elektrischen Feldes durch eine Einhüllende  $f(t)$  berücksichtigt, die zuvor (Gl. 2.1.15) zur Darstellung einer analytischen Lösung vernachlässigt wurde.

Die Berechnung der Integrale des Vektorpotenzial  $\mathbf{A}(t) = -\int_{-\infty}^t \mathbf{E}(t') dt'$  und von  $\alpha(t) = \int_{-\infty}^t \mathbf{A}(t') dt'$  erfolgt dabei numerisch für diskrete Zeitschritte

$$t_k = t_{start} + k \cdot \Delta t \quad (3.2.1)$$

im Zeitintervall zwischen  $t_{start}$  und  $t_{ende}$ . Die Schrittweite  $\Delta t$  wird über  $\Delta t = T/\#N$  festgelegt, wobei  $\#N$  die Anzahl der gewünschten Schritte pro Laserperiode  $T$  ist. Mit der Näherung der Integrale über die erweiterte Mittelpunkregel<sup>1</sup> (entsprechend Gl. 4.1.19 in [99]) folgt :

$$\mathbf{A}(t_k) = -\Delta t \cdot \sum_{j=0}^{k-1} \mathbf{E}\left(t_j + \frac{\Delta t}{2}\right), \quad \alpha(t_k) = \Delta t \cdot \sum_{j=0}^{k-1} \left(\frac{\mathbf{A}(t_j) + \mathbf{A}(t_{j+1})}{2}\right). \quad (3.2.2)$$

Die Näherung ist nur gültig, sofern für die Einhüllende  $f(t_{start}) \approx 0$  und  $f(t_{ende}) \approx 0$  und somit auch  $\int_{-t_{start}}^{t_{ende}} \mathbf{E}(t) dt \approx 0$  gilt. Typischerweise wird die Einhüllende  $f(t)$  eines Laserpulses durch eine Gauß-Kurve beschrieben. Da sich diese der Null nur asymptotisch nähert, müsste das Zeitintervall einer numerischen Berechnung sehr groß gewählt werden, um diese Bedingung mit hinreichender Genauigkeit zu erfüllen. Aus diesem Grund wird stattdessen eine  $\sin^2$ -förmige Einhüllende der Form

$$f(t) = \begin{cases} \sin^2\left(\frac{\omega}{4n}t - \frac{\pi}{2}\right) & \text{für } -nT \leq t < 0 \\ 1 & \text{für } 0 \leq t < N \cdot T \\ \sin^2\left(-\frac{\omega}{4n}t + \frac{\omega}{4n}NT + \frac{\omega}{4}T\right) & \text{für } N \cdot T \leq t < (N+n) \cdot T \\ 0 & \text{für sonstige Werte } t \end{cases} \quad (3.2.3)$$

verwendet [77], die den zentralen Teil einer Gauß-Kurve gut wiedergibt, an den Flanken jedoch vollständig auf Null abfällt. Der ganzzahlige Parameter  $n$  variiert die Dauer der an- und absteigenden Flanke des Potenzials um ganze Laserperioden. Zusätzlich kann über den Parameter  $N$  ein flacher Mittelteil der Dauer  $N \cdot T$  erzeugt werden. Dies approximiert den Fall eines sehr

<sup>1</sup> Genauere numerische Verfahren höherer Ordnung existieren, jedoch reicht die Genauigkeit der erweiterten Mittelpunkregel für die hier verwendeten stetigen elektrischen Felder aus, da diese sich pro Zeitschritt  $\Delta t$  kaum ändern.

langen Laserpulses, bei dem sich die Einhüllende nur langsam ändert, ohne die Berechnung über ein großes Zeitintervall durchführen zu müssen. Am Beispiel eines linear polarisierten Laserfeldes mit

$$\mathbf{E}(t) = E_0 f(t) \cos(\omega t + \varphi_{CEP}) \mathbf{e}_z \quad (3.2.4)$$

ergeben für sich verschiedene Kombinationen von  $n$  und  $N$  die in Abbildung 3.2.1 gezeigten Pulsformen. Die Phase  $\varphi_{CEP}$ , ist die Phase der Trägerwelle im Bezug zur Einhüllenden des Laserpulses.

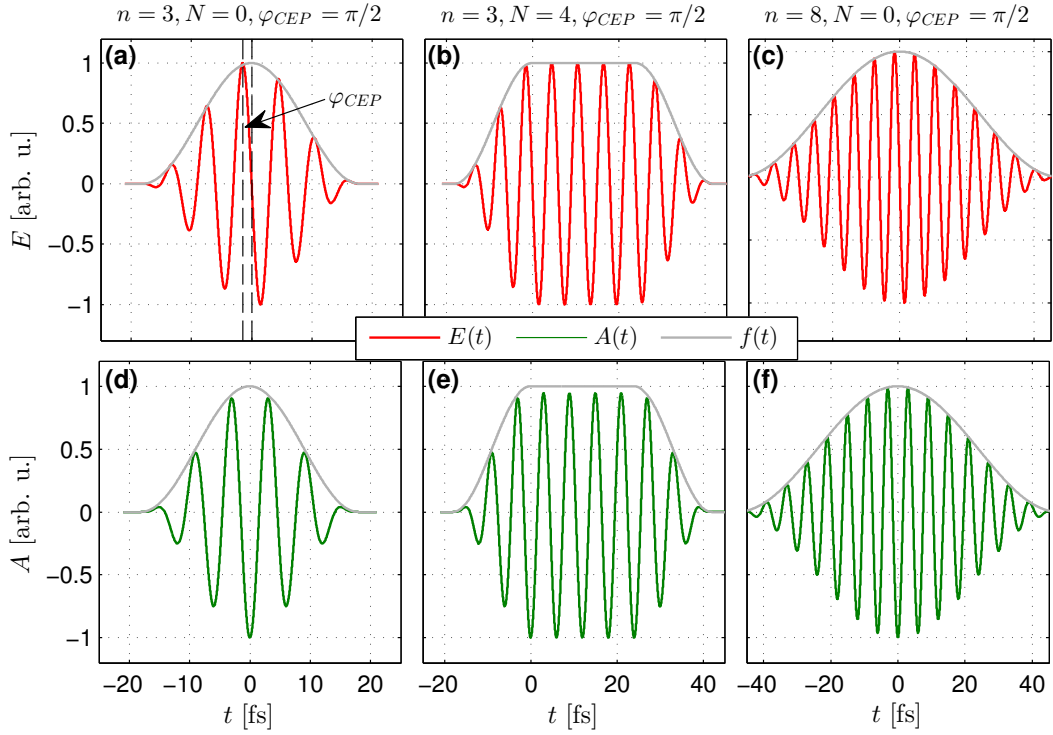


Abbildung 3.2.1: Elektrisches Feld  $\mathbf{E}(t)$  und Vektorpotenzials  $\mathbf{A}(t)$  eines durch eine  $\sin^2$ -Einhüllende beschriebenen linear polarisierten Laserpulses mit  $\lambda = 1800$  nm und  $\varphi_{CEP} = 0$ . Für  $N = 0$  ergibt sich eine Gauß-ähnliche Pulsform, deren Breite mit dem ganzzahligen Parameter  $n$  variiert werden kann ((a), (c), (d), (f)). Ein  $N > 0$  erzeugt einen Puls mit einem flachen Mittelteil ((b), (e)), wodurch ein langer Puls mit vielen Laserzyklen ((c), (f)) angenähert werden kann. Es muss beachtet werden, dass dem flachen Mittelteil bei der numerischen Berechnung des Vektorpotenzials  $\mathbf{A}(t)$  eine Asymmetrie aufgeprägt wird, wenn  $\varphi_{CEP} \neq 0$  und  $\varphi_{CEP} \neq \pi$  ist (e). Sie entspricht der Asymmetrie eines Pulses mit gleichem  $n$  und  $N = 0$  (d).

Es ist zu beachten, dass die Methode, einen langen Puls durch einen flachen Mittelteil zu approximieren nur für  $\varphi_{CEP} = 0$  bzw.  $\varphi_{CEP} = \pi$  sinnvoll ist, da sonst dem numerisch bestimmten Vektorpotenzial  $\mathbf{A}(t_k)$  eine Asymmetrie aufgeprägt wird, die der Asymmetrie eines Pulses mit wenigen Zyklen entspricht (vergleiche Abb. 3.2.1 (d) und (e)). Für einen langen Puls sollte das Vektorpotenzial jedoch keine signifikante Asymmetrie aufweisen, wie Abb. 3.2.1 (f) zeigt. Dies hat Auswirkungen darauf, wie ein Zwei-Farben-Feld mit einer  $\sin^2$ -förmigen Einhüllenden zu beschreiben ist. Für ein orthogonales Zwei-Farben-Feld der Form

$$\mathbf{E}(t) = E_0 \cdot [f(t) \cos(\omega t) \mathbf{e}_z + \epsilon \cdot f(t) \cos(2\omega t + \varphi_{rel}) \mathbf{e}_y] \quad (3.2.5)$$



muss, um eine ungewollte Asymmetrie des Vektorpotenzials zu vermeiden, zusätzlich die Einhüllende verschoben werden, sodass  $\varphi_{CEP} = 0$  bzw.  $\pi$  für beide  $\cos$ -Terme erfüllt ist. Es folgt

$$\mathbf{E}(t) = E_0 \cdot \left[ f(t) \cos(\omega t) \mathbf{e}_z + \epsilon \cdot f\left(t + \frac{\varphi_{rel}}{2\omega}\right) \cos(2\omega t + \varphi_{rel}) \mathbf{e}_y \right]. \quad (3.2.6)$$

Weiterhin sollte für die Einhüllende ein halbzahliges  $N$  verwendet werden, damit das fundamentale Laserfeld  $|\mathbf{E}_z|$  im flachen Teil der Einhüllenden für beide Vorzeichen  $\text{sign}(\mathbf{E}_z)$  die gleiche Anzahl an Maxima aufweist. Damit wird eine bevorzugte Ionisation bei einem Vorzeichen  $\text{sign}(\mathbf{E}_z)$  vermieden. Abbildung 3.2.2 zeigt das in Gleichung 3.2.6 definierte Feld für die relativen Phasen  $\varphi_{rel} = -\pi/2$  (a),  $\varphi_{rel} = 0$  (b) und  $\varphi_{rel} = \pi/2$  (c).

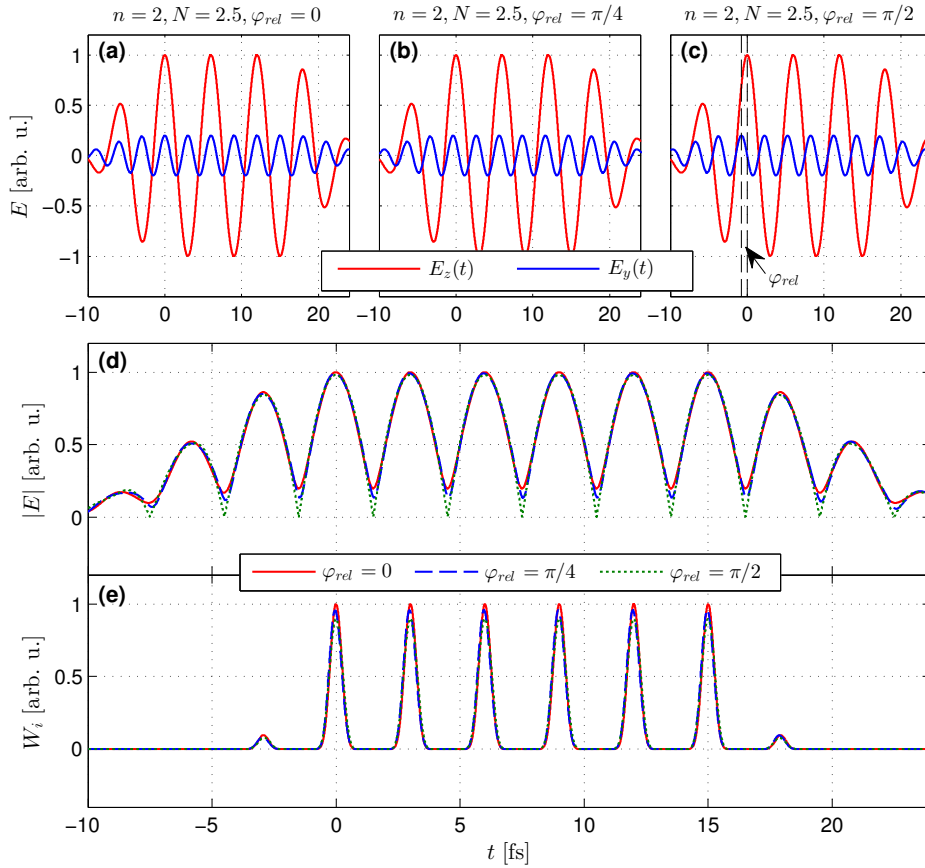


Abbildung 3.2.2: Darstellung der elektrischen Feldkomponenten  $\mathbf{E}_z$ ,  $\mathbf{E}_y$  ((a) - (c)),  $|\mathbf{E}|$  (d) und Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i$  (e) eines orthogonalen Zwei-Farben-Feldes (Gl. 3.2.6) für verschiedene relative Phasen  $\varphi_{rel}$ . Die absolute Feldstärke  $|\mathbf{E}|$  sowie die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i$  variieren nur wenig mit der relativen Phase  $\varphi_{rel}$ . Die Frequenz  $\omega$  entspricht einer Wellenlänge von 1800 nm und das Verhältnis der Feldamplituden von  $\mathbf{E}_z$  und  $\mathbf{E}_y$  ist  $\epsilon = 0.2$ . Die Parameter der Einhüllenden sind  $n = 2$  und  $N = 2.5$ .

Die Frequenz  $\omega$  entspricht einer Wellenlänge von 1800 nm, die Parameter der Einhüllenden sind  $n = 2$ ,  $N = 2.5$  und das Verhältnis der Feldamplituden ist  $\epsilon = 0.2$ . Das absolute elektrische Feld  $|E|$  (d) variiert nur wenig mit der relativen Phase  $\varphi_{rel}$ , weshalb auch Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t)$  (Gl. 2.1.7) nur schwach moduliert wird (e). Die Maxima des absoluten elektrischen Feldes hängen von  $\varphi_{rel}$  ab und variieren zwischen  $\max(|E|) = E_0\sqrt{1 + \epsilon^2}$  (bei  $\varphi_{rel} = 0$  und  $\varphi_{rel} = \pi$ ) und  $\max(|E|) = E_0$  ( $\varphi_{rel} = -\pi/2$  und  $\varphi_{rel} = \pi/2$ ).

Im Gegensatz dazu wird die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i$  bei einem parallelen Zwei-Farben-Feld

$$\mathbf{E}(t) = E_0 \cdot \left[ f(t) \cos(\omega t) \mathbf{e}_z + \epsilon \cdot f\left(t + \frac{\varphi_{rel}}{2\omega}\right) \cos(2\omega t + \varphi_{rel}) \mathbf{e}_z \right] \quad (3.2.7)$$

schon bei einem um den Faktor Vier kleinerem Amplitudenverhältnis  $\epsilon = 0.05$  signifikant beeinflusst, wie in Abbildung 3.2.3 zu beobachten ist. Der Grund hierfür ist, dass die Felder sich bei paralleler Ausrichtung konstruktiv bzw. destruktiv überlagern können. Dabei werden bei der konstruktiven Überlagerung eines Maximums des  $\omega$ -Feldes mit einem Maximum des  $2\omega$ -Feldes ( $\max |E| = E_0(1 + \epsilon)$ ), die Maxima der benachbarten Halbzyklen destruktiv überlagert ( $\max |E| = E_0(1 - \epsilon)$ ). Dies führt dazu, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit entweder gerade ( $\varphi_{rel} = 0$ ) oder ungerade ( $\varphi_{rel} = \pi$ ) Halbzyklen bevorzugt (a, c). Für  $\varphi_{rel} = \pi/2$  (b) sind die Ionisationswahrscheinlichkeiten für gerade und ungerade Halbzyklen gleich groß, jedoch verschieben sich die Schwerpunkte bei geraden Halbzyklen hin zu früheren Zeiten und bei ungerade Zyklen zu späteren Zeiten. Für  $\varphi_{rel} = -\pi/2$  ist die Situation umgekehrt.

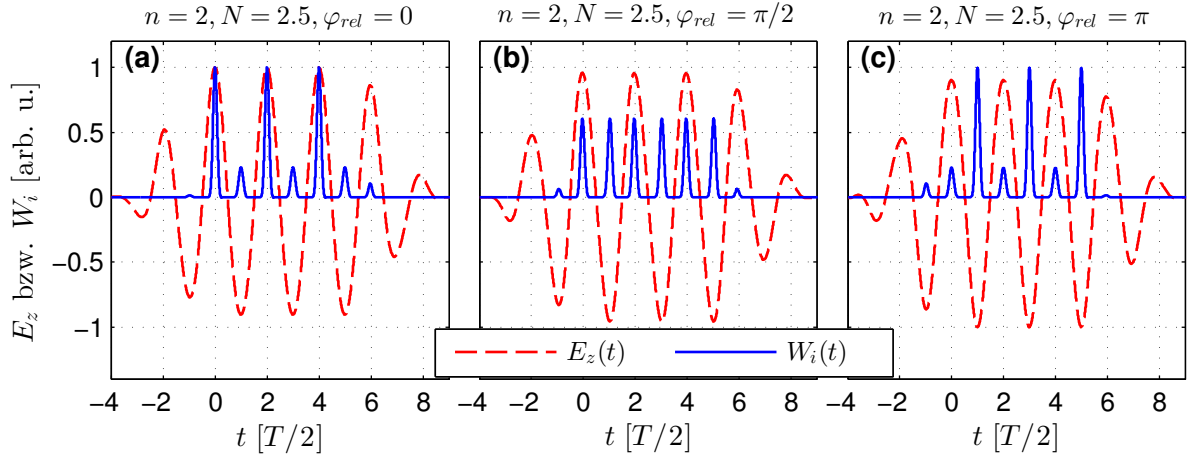


Abbildung 3.2.3: Elektrische Feldstärke  $\mathbf{E}$  und Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i$  eines parallelen Zwei-Farben-Feldes (Gl. 3.2.7) für verschiedene relative Phasen  $\varphi_{rel}$ . Die Zeitachse wurde auf Halbzyklen  $T/2 = \pi/\omega$  normiert. Im Gegensatz zu einem orthogonalen Zwei-Farben-Feld (Abb. 3.2.2) zeigt die Ionisationswahrscheinlichkeit signifikante Abhängigkeiten von der relativen Phase  $\varphi_{rel}$ . Für  $\varphi_{rel} = 0$  dominiert die Ionisationswahrscheinlichkeit bei geraden Halbzyklen, für  $\varphi_{rel} = \pi$  bei ungeraden Halbzyklen des Laserpulses. Die Frequenz  $\omega$  entspricht einer Wellenlänge von 1800 nm und das Verhältnis der Feldamplituden des  $\omega$ -Terms und des  $2\omega$ -Terms ist  $\epsilon = 0.05$ . Die Parameter der Einhüllenden sind  $n = 2$  und  $N = 2.5$ .

Die Betrachtungen der Ionisationswahrscheinlichkeit von orthogonalen und parallelen Zwei-Farben-Feldern zeigen, dass sich parallele Zwei-Farben-Felder ausgezeichnet eignen, um die Ionisationszeiten  $t_i$  der Tunnelionisation zu beeinflussen. Orthogonale Zwei-Farben-Felder beeinflussen hingegen die Ionisationswahrscheinlichkeit kaum, können aber, wie bereits in Abbildung 2.1.3 gezeigt, als Filter für die Elektronenrückkehr wirken [39]. Dies entspricht im weitesten Sinne einer Beeinflussung der Rückkehrzeiten  $t_r$ . Nachdem nun die Feldvektoren bestimmt sind, können in der Simulation die Verteilungen gestreuter Elektronen  $W_{STREU}$  und direkter Elektronen  $W_{DIR}$  berechnet werden.

### 3.3 Gestreute Elektronen

Bei der Berechnung der Verteilung gestreuter Elektronen wird der Einfluss des Atompotenzial auf die Elektronentrajektorie in Form eines einzelnen elastischen Streueignisses zum Zeitpunkt  $t_r$  der Elektronenrückkehr berücksichtigt. Da in der vorgestellten Simulation für jede Ionisationszeit  $t_i$  vollständige Elektronenverteilungen berechnet werden, wird fortan mit Trajektorie die Flugbahn des Schwerpunktes des Elektronenwellenpaketes bezeichnet, diese entspricht der Trajektorie eines Elektrons ohne Anfangsgeschwindigkeit. Abgesehen von dem einzelnen Streueignis wird jede weitere Wechselwirkung mit dem Atompotenzial vernachlässigt. Entsprechend Gleichung 2.1.18 und 2.1.19 gilt für Impuls  $\mathbf{p}$  und Trajektorie  $\mathbf{r}$  des Schwerpunktes vor dem Streueignis

$$\mathbf{p}(t, t_i) = \mathbf{A}(t) - \mathbf{A}(t_i) \quad (3.3.1)$$

$$\mathbf{r}(t, t_i) = \boldsymbol{\alpha}(t) - \boldsymbol{\alpha}(t_i) - \mathbf{A}(t_i)(t - t_i) + \mathbf{r}_0 \quad (3.3.2)$$

wenn  $t \leq t_r$ .

#### Definition der Rückkehrzeit $t_r$

Bevor die Streuverteilungen berechnet werden können, muss der Rückkehrzeitpunkt  $t_r$  definiert werden. Während  $t_r$  für linear polarisierte Felder der Zeitpunkt ist, bei dem der Schwerpunkt den Nullpunkt des Koordinatensystems passiert, ist die Situation für nicht linear polarisierte Felder komplizierter, da die Trajektorie des Schwerpunktes nur selten exakt den Nullpunkt trifft. Für ein in der  $z$ - $y$ -Ebene rotierendes orthogonales Zwei-Farben-Feld (Gl. 3.2.6) mit  $\epsilon \ll 1$  werden die Trajektorien den Nullpunkt in der Regel mit dem Abstand  $b$  verfehlen (Abb. 3.3.1 (a)). Trotzdem ist Streuung noch immer möglich, wenn die Anfangsgeschwindigkeit  $v_y(t_i)$  ungefähr

$$v_y(t_i) \approx -\frac{b}{\tau} \quad (3.3.3)$$

erfüllt (Abb. 3.3.1 (b)), d. h. wenn Teile des Wellenpaketes mit dem Nullpunkt bzw. dem totalen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{total}$  überlappen.  $\tau = t_r - t_i$  ist hier die Flugzeit zwischen dem Ionisationszeitpunkt  $t_i$  und dem Zeitpunkt  $t_r$  bei dem die Trajektorie die  $x$ - $y$ -Ebene durchstößt, d. h.  $[0, y(t_r), 0]$ .

Dieser Ansatz, den Rückkehrzeitpunkt  $t_r$  zu definieren, entspricht der Betrachtung der  $2\omega$ -Komponente als kleine Störung, die die Rückkehrzeiten der linear polarisierten  $\omega$ -Komponente nur geringfügig beeinflusst. Der Ansatz ist nur gültig, wenn die Verteilung senkrechter Anfangsgeschwindigkeiten  $\mathbf{p}_\perp(t_i)$  nur kleine Impulse  $p_z$  enthält z. B.  $\arctan(E_y(t_i)/E_z(t_i)) \ll 1$ . Ansonsten können alternativ die Zeiten  $t_{min}$  der Minima in  $\mathbf{r}(t, t_i)$  als Rückkehrzeitpunkte verwendet werden, sofern eine Überlappung des Wellenpakets mit dem Nullpunkt gegeben ist.

Für Zeiten  $t > t_r$  nach der elastischen Streuung gilt

$$\mathbf{p}(t, t_r) = [\mathbf{A}(t) - \mathbf{A}(t_r)] + \mathbf{p}_{streu}(\mathbf{p}_r, \varphi_{streu}, \theta_{streu}), \quad (3.3.4)$$

wobei  $\mathbf{p}_r = \mathbf{A}(t_r) - \mathbf{A}(t_i) + \mathbf{p}_\perp$  der Rückkehrimpuls des Anteils des Wellenpakets ist, der zu

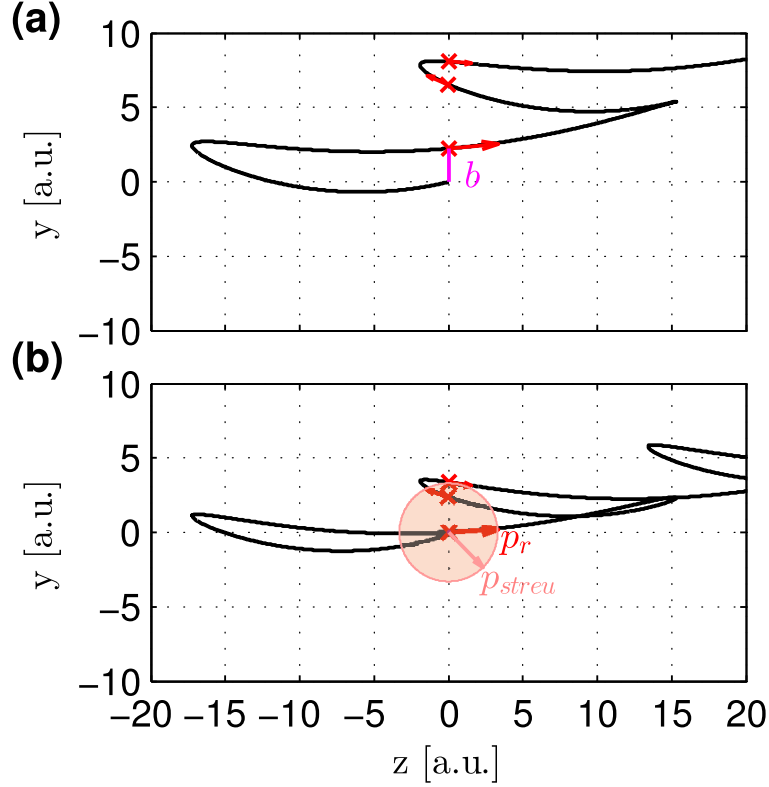


Abbildung 3.3.1: Beispiel einer spezifischen Trajektorie des Schwerpunktes der Elektronenverteilung in einem orthogonalen Zwei-Farben-Laserfeld. (a) Aufgrund des störenden Einflusses der  $2\omega$ -Komponente des Feldes verfehlt der Schwerpunkt der Verteilung das Ursprungslage um den Abstand  $b$  in  $y$ -Richtung. Eine Trajektorie mit Anfangsgeschwindigkeit  $v_y(t_i) = -b/\tau$  trifft hingegen das Ursprungslage (b). Durch elastische Streuung wird der Rückkehrimpuls  $\mathbf{p}_r$  in eine Streukugel mit Radius  $p_{streu}$  gestreut. Die Impulsverteilung wird dabei durch den differentiellen Wirkungsquerschnitt  $d\sigma/d\Omega$  beschrieben.

einer Streuung beiträgt ( $|\mathbf{p}_\perp| = -b/\tau$ ). Für den finalen Impuls nach der Streuung folgt

$$\mathbf{p}_f^{streu} = -\mathbf{A}(t_r) + \mathbf{p}_{streu}(\mathbf{p}_r, \varphi_{streu}, \theta_{streu}). \quad (3.3.5)$$

Aufgrund der Periodizität des Laserfeldes ist es möglich, dass mehrere Rückkehrzeiten  $t_r$  existieren, für die eine Streuung möglich ist. Deshalb wird für jedes  $t_r$  jeweils eine eigene Streuverteilung  $W_{DCS}(\mathbf{p}, t_r)$  berechnet und mit einer jeweiligen Streuwahrscheinlichkeit  $W_r(t_r)$  gewichtet. Bevor die Berechnung der Streuverteilungen beschrieben wird, wird zunächst auf die Streuwahrscheinlichkeiten eingegangen.

### Streuwahrscheinlichkeit

Die Wahrscheinlichkeit, dass Streuung für eine Rückkehr zum Zeitpunkt  $t_r$  stattfindet, ist maßgeblich von der Dispersion und Verschiebung des Elektronenwellenpakets sowie von dem totalen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{total}(\mathbf{p}_r)$  abhängig. Um ein Maß für die Streuwahrscheinlichkeit  $0 \leq W_r(t_r) \leq 1$  zu definieren, wird daher der Anteil des quadrierten Wellenpakets ermittelt, der sich mit dem totalen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{total}$  überlappt. Dazu muss das Wellenpaket im

Ortsraum zum Zeitpunkt  $t_r$  berechnet werden. Das eindimensionale Wellenpaket im Impulsraum

$$|\hat{\psi}(p_{\perp})|^2 = W_{\perp}(E(t_i), p_{\perp}) = \sqrt{\frac{\kappa}{|E|\pi}} \exp\left[-\frac{\kappa}{|E|} p_{\perp}^2\right] \quad (3.3.6)$$

ist zum Zeitpunkt der Ionisation  $t_i$  bekannt (Gl. 2.1.8). Mit  $\beta_0 = \sqrt{\kappa/|E|}$  und  $\psi(r_{\perp}, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \hat{\psi}(p_{\perp}) \exp[i(p_{\perp} r_{\perp} - \frac{p_{\perp}^2}{2} t)] dp$  ergibt sich analog zu [100] im Ortsraum

$$|\psi(r_{\perp}, \tau)|^2 = \frac{1}{\sqrt{\pi}\beta(\tau)} \cdot \exp\left[-\frac{r_{\perp}^2}{\beta(\tau)^2}\right], \quad (3.3.7)$$

wobei sich das Wellenpaket entsprechend  $\beta(\tau) = \sqrt{\beta_0^2 + \tau^2/\beta_0^2}$  über die Zeit verbreitert. Wenn eine senkrechte Verbreiterung in zwei Dimensionen (z. B.  $x$  und  $y$ ) angenommen wird, kann das quadrierte Wellenpaket zum Zeitpunkt  $t_r$  durch eine zweidimensionale Gauß-Verteilung beschrieben werden, die um den Abstand  $b$  aus den Nullpunkt verschoben ist:

$$|\psi(x, y, \tau(t_i, t_r), b(t_i, t_r))|^2 = \frac{1}{\pi \cdot \beta(\tau)^2} \exp\left[-\frac{x^2}{\beta(\tau)^2}\right] \exp\left[-\frac{(y-b)^2}{\beta(\tau)^2}\right]. \quad (3.3.8)$$

Die Amplitude am Nullpunkt nimmt also aufgrund der Verbreiterung des Wellenpakets proportional zu  $\beta(\tau)^{-2}$  und aufgrund der Verschiebung proportional zu  $\exp\left[-\frac{b^2}{\beta(\tau)^2}\right]$  ab. Der überlappende Anteil ergibt sich durch die Integration über das Wellenpaket innerhalb des Radius  $R = \sqrt{\sigma_{total}(\mathbf{p}_r(t_i, t_r))/\pi}$ . Für die Berechnung auf einem diskreten Gitter gilt somit

$$W_r(t_i, t_r) = \sum_x \sum_y |\psi(x, y, \tau(t_i, t_r), b(t_i, t_r))|^2 \cdot \Delta x \Delta y \text{ mit } x^2 + y^2 \leq R(\mathbf{p}_r)^2. \quad (3.3.9)$$

Finden sich für eine Ionisationszeit  $t_i$  mehrere Rückkehrzeiten  $t_r$ , muss außerdem für die späteren Rückkehrzeiten die Aufzehrung des Wellenpaketes durch Streuung zu früheren Zeiten berücksichtigt werden. Es wird vereinfacht angenommen, dass während der Streuung das zurückkehrende Wellenpaket homogen reduziert wird, also dass kein Loch in das Wellenpaket „gefressen“ wird. Das auf Eins normierte Wellenpaket wird dabei für jede Rückkehr um die Streuwahrscheinlichkeit  $W_r(t_r)$  (Gl. 3.3.9) reduziert. Für die zweite Rückkehrzeit  $t_r^{(2)}$  verbleibt also nur noch der bei der ersten Rückkehrzeit nicht gestreute Anteil des Wellenpaketes  $1 - W_r(t_r^{(1)})$ .

Es folgt

$$\begin{aligned} W_r(t_i, t_r^{(1)}) &= 1 \cdot W_r(t_i, t_r^{(1)}) \\ W_r(t_i, t_r^{(2)}) &= \left(1 - W_r(t_i, t_r^{(1)})\right) \cdot W_r(t_i, t_r^{(2)}) \\ W_r(t_i, t_r^{(3)}) &= \left(1 - W_r(t_i, t_r^{(1)}) - W_r(t_i, t_r^{(2)})\right) \cdot W_r(t_i, t_r^{(3)}) \\ &\vdots \\ W_r(t_i, t_r^{(n)}) &= \left(1 - \sum_{k=1}^{n-1} W_r(t_i, t_r^{(k)})\right) \cdot W_r(t_i, t_r^{(n)}) \end{aligned} \quad (3.3.10)$$

## Berechnung der Streuverteilungen

Finden sich für eine Ionisationszeit  $t_i$  eine oder mehrere Rückkehrzeiten  $t_r$ , wird für jede Rückkehrzeit  $t_r$  analog zu Abschnitt 2.2 mithilfe der Gleichungen 2.2.4 und 2.2.5 eine Streuverteilung  $W_{DCS}(\mathbf{p}_r, \theta_{streu}, \varphi_{streu})$  berechnet. Die Verteilungen werden dabei durch Drehmatrizen (Gl. 2.2.6) so ausgerichtet, dass ein Streuwinkel  $\theta_{streu} = 0$  dazu führt, dass der resultierende Streuvektor  $\mathbf{p}_{streu}$  parallel zur Richtung des Vektors  $\mathbf{p}_r$  des Rückkehrimpulses steht. Durch Koordinatentransformation der Verteilungen und Einordnung auf einem kartesischen Gitter erhält man  $W_{DCS}(p_x, p_y, p_z)$ . Am Beispiel eines orthogonalen Zwei-Farben-Felds wird die Streuverteilung  $W_{DCS}$  durch Streuung an einem Yukawa-Potenzials ( $\mu = 0.2$ ) für eine spezifische Ionisationszeit  $t_i$  mit drei verschiedenen Rückkehrzeiten  $t_r$  in Abbildung 3.3.2 (a) dargestellt. Die Vektoren der Rückkehrimpulse  $\mathbf{p}_r(t_r)$  werden ebenfalls gezeigt. Die Unterschiede in Betrag und Richtung der Vektoren führen zu drei kugelförmigen Streuverteilungen mit unterschiedlichen Radien und Ausrichtungen. Nach der Streuung zum Zeitpunkt  $t_r$  findet eine weitere Beschleunigung durch das Laserfeld statt. Entsprechend Gleichung 2.1.27 gilt  $\mathbf{p}_f^{streu} = -\mathbf{A}(t_r) + \mathbf{p}_{streu}$ .

Die finale Verteilung der Streuung zu Ionisationszeit  $t_i$

$$W_{DCS}(\mathbf{p}_f^{streu}) = W_{DCS}(\mathbf{p}_f^{streu} + \mathbf{A}(t_r)) = W_{DCS}(\mathbf{p}_{streu}) \quad (3.3.11)$$

entspricht also einer Verschiebung der Streuverteilungen  $W_{DCS}(\mathbf{p}_{streu})$  um das invertierte Vektorpotenzial  $-\mathbf{A}(t_r)$  zum Zeitpunkt  $t_r$  (Abb. 3.3.2 (b)). Die Vektoren stellen  $-\mathbf{A}(t_r)$  dar, wobei die Farbzuordnung analog zu (a) ist. Die Multiplikation der Streuverteilungen mit den jeweiligen Wichtungsfaktoren und das Summieren über alle Kombinationen von Ionisations- und Rückkehrzeit ergibt die gesamte Streuverteilung

$$W_{STREU}(\mathbf{p}) = \sum_{t_i} \sum_{t_r} W_i(t_i) W_r(t_i, t_r) W_{DCS}(\mathbf{p}_f^{streu}) \quad (3.3.12)$$

(Abb. 3.3.2 (c)). Dabei wird mit der Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i)$  (Gl. 2.1.7) und der Streuwahrscheinlichkeit  $W_r(t_i, t_r)$  gewichtet.

Existiert zu einem  $t_i$  nach Berücksichtigung der Streuwahrscheinlichkeiten aller  $t_r$  ein nicht gestreuter Anteil  $1 - \sum_{t_r} W_r(t_r) \geq 0$ , wird dieser als Verteilung direkter Elektronen behandelt. Eine höhere Streuwahrscheinlichkeit führt also zu einer schwächeren Verteilung direkter Elektronen.

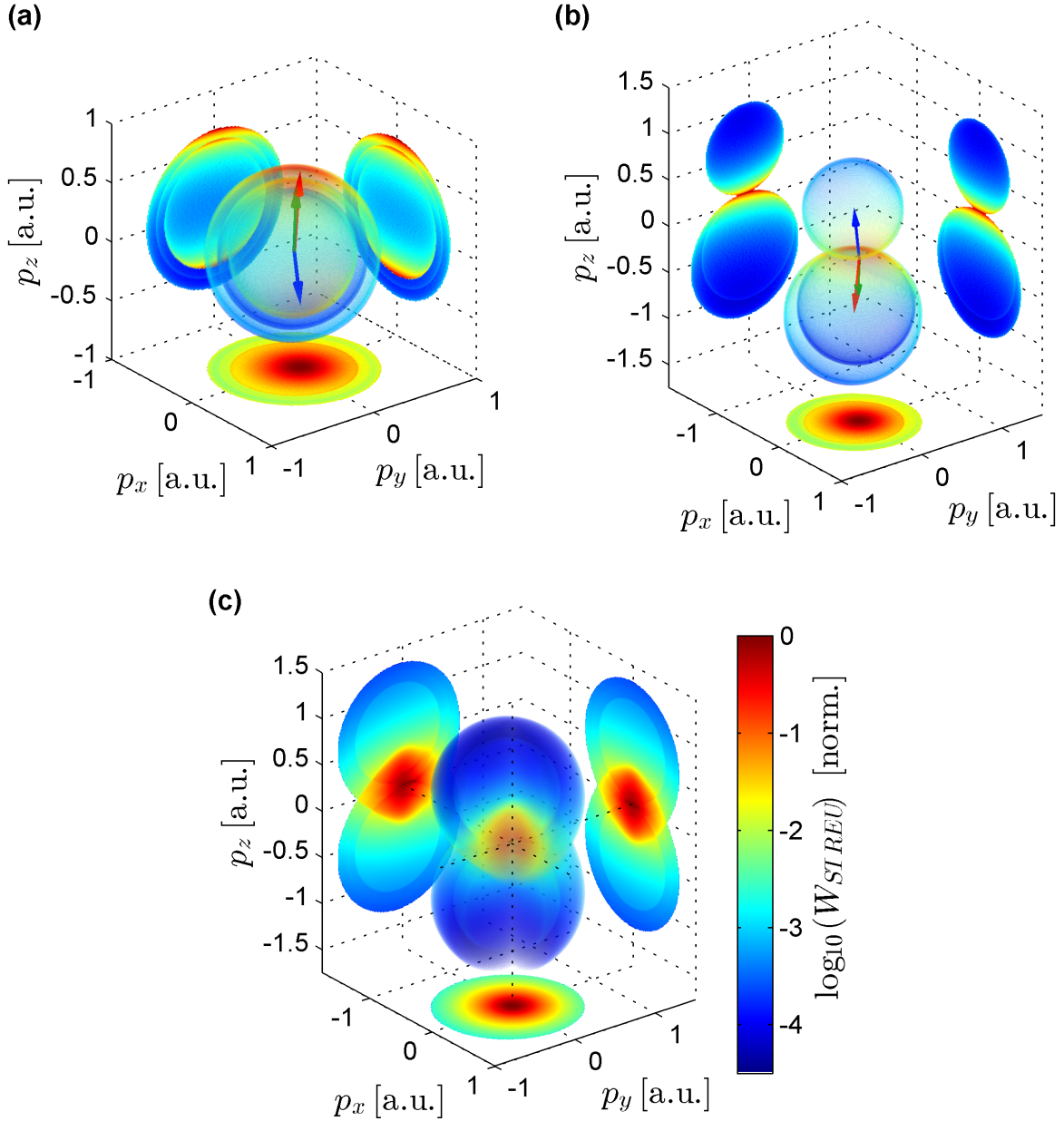


Abbildung 3.3.2: Berechnung der gestreuten Elektronenimpulsverteilung  $W_{STREU}(\mathbf{p})$ . Zuerst werden zu jeder Rückkehrzeit  $t_r$  die Streuverteilungen  $W_{DCS}(\mathbf{p}_r, \varphi_{streu}, \theta_{streu})$  berechnet (a).  $\theta_{streu}$  ist der Winkel zwischen den Vektoren des Rückkehrimpulses  $\mathbf{p}_r$  und dem Streuvektor  $\mathbf{p}_{streu}$  (Gl. 2.2.5 und 2.2.8). Die Vektoren  $\mathbf{p}_r$  sind für die erste ( $t_r^{(1)}$ ), zweite ( $t_r^{(2)}$ ) und dritte Rückkehrzeit ( $t_r^{(3)}$ ) in rot, blau und grün eingezeichnet. Durch weitere Wechselwirkungen mit dem Laserfeld werden die Verteilungen in (a) um die Vektoren  $-\mathbf{A}(t_r)$  verschoben (b). Die Farben sind denselben Rückkehrzeiten wie in (a) zugeordnet. Durch Summieren der Verteilungen aller  $t_i$ - $t_r$ -Kombinationen ergibt sich die gesamte Elektronenimpulsverteilung gestreuter Elektronen  $W_{STREU}(\mathbf{p})$  (c). Dabei wird jede einzelne Streuverteilung  $W_{DCS}(\mathbf{p}_r, \varphi_{streu}, \theta_{streu})$  mit der Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i)$  und der Streuwahrscheinlichkeit  $W_r(t_i, t_r)$  gewichtet. Außerdem wird die Verteilung im zum Betrachter zeigenden Bereich ( $p_x > 0$  und  $p_y < 0$ ) ausgelassen um den Blick auf die inneren Bereiche der Verteilung freizugeben. Für (a), (b) und (c) sind zudem die Projektionen  $\int W(\mathbf{p}) dp_x$ ,  $\int W(\mathbf{p}) dp_y$  und  $\int W(\mathbf{p}) dp_z$  der Verteilungen  $W_{STREU}$  bzw.  $W_{DCS}$  auf die einzelnen Raumebenen dargestellt.

### 3.4 Direkte Elektronen

Bei der Berechnung der Verteilung direkter Elektronen  $W_{DIR}$  wird davon ausgegangen, dass das Elektron nach der Ionisation zum Zeitpunkt  $t_i$  keine weitere Beeinflussung durch das Atompotential erfährt. Das Elektron wird somit als freies Elektron im Laserfeld betrachtet. Entsprechend Gleichung 2.1.21 erreicht das Elektron durch die Beschleunigung im Laserfeld den finalen Impuls

$$\mathbf{p}_f^{dir}(t_i) = -\mathbf{A}(t_i) + \mathbf{p}_\perp, \quad (3.4.1)$$

wobei  $\mathbf{p}_\perp$  ( $\mathbf{p} \perp \mathbf{E}$ ) der senkrechte Anfangsimpuls des Elektrons zum Zeitpunkt  $t_i$  ist. Die Richtung des elektrischen Feldvektors  $\mathbf{E}(t_i)$  wird in Polarkoordinaten durch die Winkel  $\theta_E$  und  $\varphi_E$

$$\theta_E = \arccos\left(\frac{\mathbf{E}(t_i) \cdot \mathbf{e}_z}{|\mathbf{E}(t_i)|}\right), \quad \varphi_E = \arctan\left(\frac{\mathbf{E}(t_i) \cdot \mathbf{e}_y}{\mathbf{E}(t_i) \cdot \mathbf{e}_x}\right) \quad (3.4.2)$$

angegeben. Somit lässt sich  $\mathbf{p}_\perp$  unter Verwendung der bereits in Gleichung 2.2.6 angegebenen Drehmatrizen durch

$$\mathbf{p}_\perp(p_\perp, \varphi_\perp) = R_z(\varphi_E) R_y(\theta_E) \begin{pmatrix} p_\perp \cdot \cos \varphi_\perp \\ p_\perp \cdot \sin \varphi_\perp \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.4.3)$$

ausdrücken. In atomaren Einheiten haben Impuls und Geschwindigkeit den gleichen Wert  $\mathbf{p} = \mathbf{v}$ , da die Elektronenmasse  $m_e = 1$  a.u. ist. Mit der Verteilung der senkrechten Anfangsgeschwindigkeit (Gl. 2.1.8) folgt auf einem Gitter mit diskreten  $\varphi_\perp$  und  $p_\perp$

$$W_\perp(\mathbf{E}(t_i), p_\perp) = \frac{\kappa}{|\mathbf{E}| \pi} \exp\left[-\frac{\kappa}{|\mathbf{E}|} p_\perp^2\right] p_\perp \Delta p_\perp \Delta \varphi_\perp. \quad (3.4.4)$$

Ein Beispiel einer solche Verteilung ist in Abbildung 3.4.1 (a) gezeigt. Der Vektor  $\mathbf{E}(t_i)$  wurde für eine deutlichere Darstellung um den Faktor 20 verlängert. Die finale Verteilung

$$W_{dir}(\mathbf{p}_f^{dir}, t_i) = W_\perp(\mathbf{E}(t_i), |\mathbf{p}_f^{dir} + \mathbf{A}(t_i)|) = W_\perp(\mathbf{E}(t_i), |\mathbf{p}_\perp|) \quad (3.4.5)$$

folgt durch das Verschieben der senkrechten Impulsverteilung  $W_\perp$  um  $-\mathbf{A}(t_i)$  (Abb. 3.4.1 (b)). Unter Berücksichtigung der Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i$  (Gl. 2.1.7) und der Wahrscheinlichkeit, dass keine Streuung stattfindet ( $1 - \sum_{t_r} W_r(t_i, t_r)$ ), wird durch Summieren über alle  $t_i$  die gesamte Verteilung direkter Elektronen

$$W_{DIR}(\mathbf{p}) = \sum_{t_i} W_i(t_i) \left(1 - \sum_{t_r} W_r(t_i, t_r)\right) W_{dir}(\mathbf{p}_f^{dir}, t_i) \quad (3.4.6)$$

bestimmt (Abb. 3.4.1 (c)). Der Term  $(1 - \sum_{t_r} W_r(t_i, t_r))$  berücksichtigt dabei die Streuverluste, die auftreten wenn das Elektron zum Ursprungsort zurückkehrt.



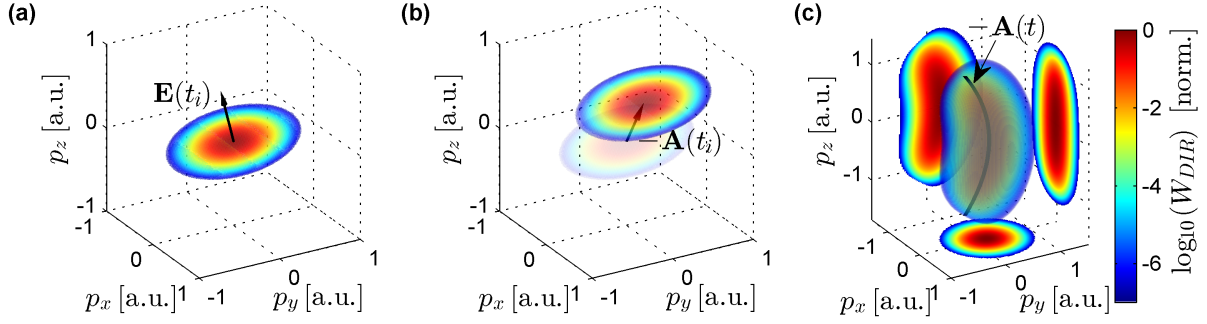


Abbildung 3.4.1: Beispiel für die Berechnung der Verteilung direkter Elektronen. Zunächst wird die senkrechte Anfangsimpulsverteilung  $W_{\perp}(\mathbf{E}(t_i), |\mathbf{p}_{\perp}|)$  (Gl. 2.1.7) mit  $\mathbf{p}_{\perp} \perp \mathbf{E}(t_i)$  berechnet (a). Verschieben der Verteilung um  $-\mathbf{A}(t_i)$  ergibt die finale Impulsverteilung direkter Elektronen  $W_{dir}(\mathbf{p}, t_i)$  dieser Ionisationszeit (b). Die Gesamtimpulsverteilung direkter Elektronen  $W_{DIR}(\mathbf{p})$  (c) ergibt sich durch summieren der Verteilungen  $W_{dir}(\mathbf{p}, t_i)$  zu jeder Ionisationszeit  $t_i$ . Dabei werden die Verteilungen mit der Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i)$  und der Wahrscheinlichkeit, dass keine Streuung stattfindet  $(1 - \sum_{t_r} W_r(t_i, t_r))$  gewichtet (Gl. 3.4.6). Zusätzlich sind die Projektionen  $\int W_{DIR}(\mathbf{p}) dp_x$ ,  $\int W_{DIR}(\mathbf{p}) dp_y$  und  $\int W_{DIR}(\mathbf{p}) dp_z$  dargestellt.

### 3.5 Strukturen der Photoelektronenverteilungen

Nachdem nun die Berechnung der Verteilung direkter und gestreuter Elektronen erläutert wurde, wird nun anhand der vorgestellten Simulation auf wichtige Energiegrenzwerte und Strukturen in den Photoelektronenspektren eingegangen. Dazu werden für den einfachen Fall eines linear polarisiertes Feldes ( $\mathbf{E} \parallel \mathbf{e}_z$ ) die Verteilungen  $W_{DIR}$  und  $W_{STREU}$  für Ionisationszeiten eines einzelnen Halbzyklus ( $0 \leq t_i < 0.5T$ ) berechnet. Für die Berechnung werden  $\lambda = 800$  nm,  $I = 4 \times 10^{13}$  W cm $^{-2}$  und  $\mu = 0.2$  verwendet. Es werden bis zu drei Rückkehrzeiten  $t_r$  berücksichtigt, wobei der flache Mittelteil ( $N = 3.5$ ) des Pulses größer als der Bereich der möglichen Rückkehrzeiten gewählt ist. Für diese Parameter ergibt sich  $U_p = 2.39$  eV.

#### Struktur der Verteilung direkter Elektronen

Es wird zunächst auf den Beitrag direkter Elektronen  $W_{DIR}$  eingegangen. Abbildung 3.5.1 (a) zeigt die normierten Feldvektoren  $E_z$ ,  $A_z$  (blaue und grüne Linie). Außerdem ist die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t)$  (blaue Fläche) und der Wichtungsfaktor  $W_i(t) (1 - \sum_{t_r} W_r(t_i, t_r))$  (rote Fläche) der direkten Elektronenverteilung normiert dargestellt. Innerhalb des Halbzyklus gibt es zwei Bereiche mit signifikanter Ionisationsrate  $W_i(t)$ . Ionisationszeiten in dem Bereich  $0 \leq t < 0.25T$  führen zu einer Rückkehr des Elektrons zum Ursprungion, weshalb in diesem Bereich Streuung möglich ist. Der Wichtungsfaktor  $W_i(t) (1 - \sum_{t_r} W_r(t_i, t_r))$  der direkten Elektronenverteilung ist in diesem Bereich gegenüber  $W_i(t)$  reduziert und weist bei  $t = 0.035T$  einen sprunghaften Anstieg auf. Die Ursache dafür ist, dass nur für  $t < 0.035T$  mehrere Rückkehrzeiten  $t_r$  möglich sind (siehe Abb. 3.5.2 (b)). Für  $t \geq 0.035T$  fallen die Terme von Rückkehrzeiten höherer Ordnung weg, weshalb die Summe  $\sum_{t_r} W_r(t_i, t_r)$  sprunghaft abfällt und somit der Anteil direkter Elektronen steigt. Die Ausprägung des Sprungs hängt dabei von den Werten der einzelnen Streuwahrscheinlichkeiten  $W_r(t_i, t_r)$  ab, die mit dem Rückkehrimpuls und der Flugzeit skalieren. Die Ausprägung des Sprungs wird dabei in der Simulation etwas überschätzt, da

für die Elektronentrajektorie nur ein elastisches Streueignis berücksichtigt wird. Dabei wird jedoch vernachlässigt, dass Elektronen, die bereits um einen kleinen Winkel  $\theta_{Streu}$  gestreut wurden, während der nachfolgenden Bewegung im Feld erneut streuen könnten. Dies führt dazu, dass die Streuwahrscheinlichkeit  $W_r(t_i, t_r)$  für Rückkehrzeiten höherer Ordnung tendenziell zu niedrig eingeschätzt wird. Für den Bereich  $0.25T \leq t < 0.5T$  können keine Elektronen zum Ursprungsort zurückkehren, weshalb der Wichtungsfaktor der direkten Elektronenverteilung für diese Ionisationszeiten  $W_i(t) (1 - \sum_{t_r} W_r(t_i, t_r)) = W_i(t)$  erfüllt. Dadurch dominiert der zweite Bereich die direkte Elektronenverteilung deutlich.

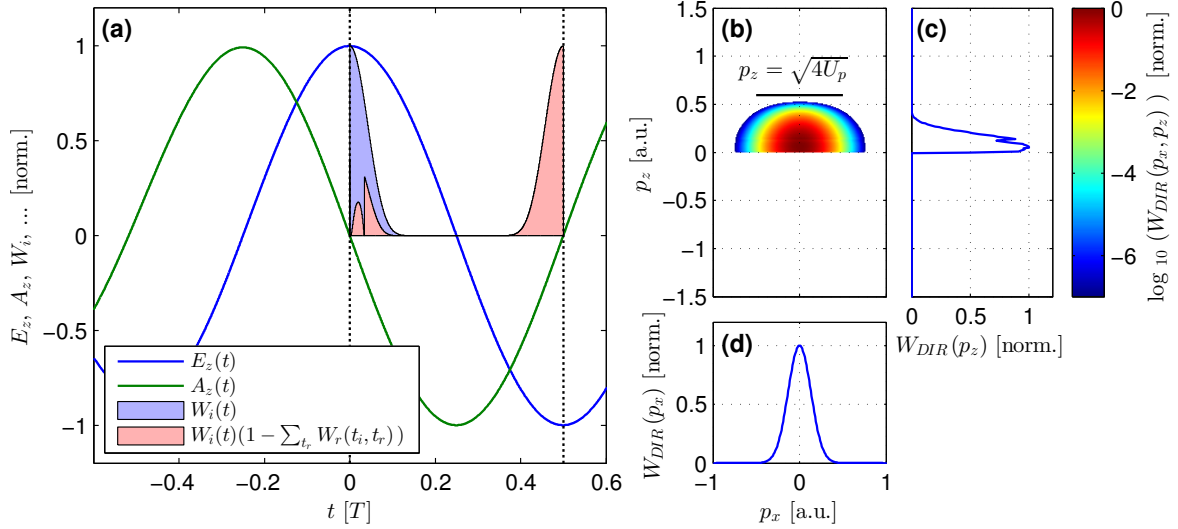


Abbildung 3.5.1: (a) Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i$ , Feldvektoren  $E_z$ ,  $A_z$  sowie Wichtungsfaktor  $W_i(t) (1 - \sum_{t_r} W_r(t_i, t_r))$  der direkten Elektronenverteilung für Ionisationszeiten in einem Halbzzyklus  $0 \leq t_i \leq 0.5T$ . (b) Für diese Ionisationszeiten resultierende zweidimensionale Impulsverteilung  $W_{DIR}(p_x, p_z)$  direkter Elektronen (Projektion  $\int W(\mathbf{p}) dp_y$ ) sowie die eindimensionalen Verteilungen  $W_{DIR}(p_z)$  (c) und  $W_{DIR}(p_x)$  (d). Der Sprung in den Verteilungen resultiert aus dem Sprung im Wichtungsfaktor bei  $t_i = 0.035T$  (a). Für  $t_i \geq 0.035T$  findet sich nur noch eine Rückkehrzeit  $t_r$  (Abb. 3.5.2 (b)), weshalb für die Summe  $\sum_{t_r} W_r(t_i, t_r)$  plötzlich nur noch ein Term  $W_r(t_i, t_r)$  existiert. Der Grenzwert für  $p_z$  ist als schwarze Linie in (b) bei  $\sqrt{4U_p}$  eingezeichnet und entspricht einer maximalen kinetischen Energie von  $2U_p$  mit  $U_p = 2.39$  eV. Details zu allen Parametern sind zu Beginn dieses Abschnittes gegeben.

Abbildung 3.5.1 (b) zeigt die Projektion der resultierenden Verteilung direkter Elektronen  $W_{DIR}(p_x, p_z)$ . Aufgrund der für  $0 \leq t < 0.5T$  stets negativen Werten  $A_z(t)$  liegt die Verteilung entsprechend Gl. 2.1.21 nur im Bereich positiver  $p_z$ -Werte. Das theoretisch mögliche Maximum von  $p_z = \sqrt{4U_p} = -A_z(0.25T)$  wird nicht ganz erreicht, da für  $t_i = 0.25T$  das elektrische Feld  $E_z(t_i) = 0$  gilt und somit auch die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i) = 0$  ist (Gl. 2.1.7). Wegen der Symmetrie des Feldes  $E_z$  würde eine Berechnung der Verteilung für den nachfolgenden Halbzzyklus  $0.5T \leq t < 1T$  zu einer an der  $p_x$ -Achse gespiegelten Verteilung führen.

Die eindimensionalen Verteilungen  $W_{DIR}(p_z)$  und  $W_{DIR}(p_x)$  werden in (c) und (d) gezeigt. Der Sprung im Wichtungsfaktor  $W_i(t) (1 - \sum_{t_r} W_r(t_i, t_r))$  der direkten Elektronenverteilung ist auch in Abbildung (c) sichtbar. Er fällt jedoch bei der logarithmischen Betrachtung der zweidimensionalen Verteilung  $W(p_x, p_z)$  (b) nicht weiter auf. Die Verteilung senkrecht zum elektrischen Feld  $W_{DIR}(p_x)$  zeigt eine Gauß-artige Verteilung. Dies ist zu erwarten, da die

senkrechte Anfangsgeschwindigkeitsverteilung  $W_{\perp}(\mathbf{E}, v_{\perp})$  (Gl. 2.1.8) durch eine Gauß-Kurve beschrieben wird. Die Abhängigkeit von der elektrischen Feldstärke  $\mathbf{E}$  wird in (b) sichtbar. Für zunehmende  $p_z$ -Werte (größere Werte  $-A_z(t_i)$ ) nimmt die elektrische Feldstärke ab (siehe (a)), wodurch die Breite der senkrechten Impulsverteilung (in Richtung  $p_x$ ) ebenfalls abnimmt.

## Struktur der Verteilung gestreuer Elektronen

Für die Verteilung gestreuer Elektronen  $W_{STREU}$  wird zunächst der Rückkehrimpuls (Abb. 3.5.2 (a)), sowie die Kombination von Ionisationszeit  $t_i$  und Rückkehrzeit  $t_r$  untersucht (b). In beiden Darstellungen repräsentiert die  $x$ -Achse die Rückkehrzeit  $t_r$ . Zur zeitlichen Orientierung werden in (a) zusätzlich das normierte elektrische Feld  $E_z$  und das normierte Vektorpotenzial  $A_z$  gezeigt. Die Darstellungsform ist angelehnt an [97].

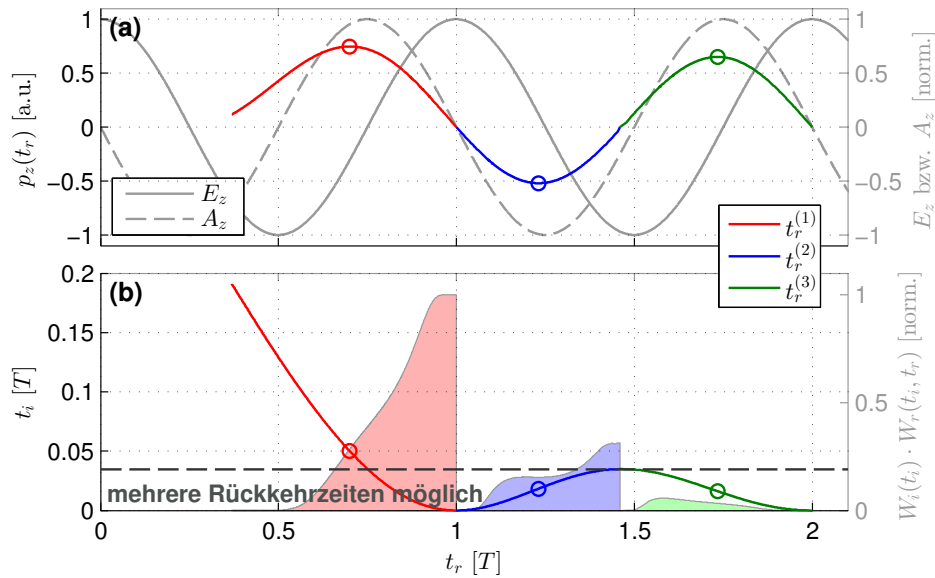


Abbildung 3.5.2: (a) Elektrische Feldstärke  $E_z(t)$ , Vektorpotenzial  $A_z(t)$  sowie Rückkehrimpuls  $p_z(t_r)$  von Elektronentrajektorien, die zum Ursprung zurückkehren. Die möglichen Kombinationen von Ionisationszeit  $t_i$  und Rückkehrzeit  $t_r$  sind in (b) dargestellt, wobei für Ionisationszeiten  $t_i < 0.035$  mehrere Rückkehrzeiten  $t_r^{(1)}$ ,  $t_r^{(2)}$ , etc. möglich sind. Die  $t_i$ - $t_r^{(1)}$ -Kombinationen sind in rot, für  $t_r^{(2)}$  in blau und für  $t_r^{(3)}$  in grün dargestellt. Dieses Schema wird auch für die Rückkehrimpulse  $p_z(t_r^{(j)})$  in (a) angewandt. Die Kreismarkierungen geben die Rückkehrzeit  $t_r^{(j)}$  mit dem jeweils höchsten Rückkehrimpuls  $|p_z(t_r^{(j)})|$  an. In (b) ist weiterhin der Wichtungsfaktor  $W_i(t_i) \cdot W_r(t_i, t_r^{(j)})$  der Streuverteilung  $W_{DCS}(\mathbf{p}_z)$  dargestellt.

Obwohl die Berechnung für Ionisationszeiten  $t_i$  zwischen 0 und  $0.5T$  durchgeführt wird, ist eine Rückkehr nur für Ionisationszeiten im Bereich  $0 \leq t_i < 0.25T$  möglich. Da sich für einige Ionisationszeiten ( $t_i < 0.035T$ ) mehrere Rückkehrzeiten  $t_r$  finden lassen, werden die betrachteten Größen entsprechend der Ordnung der Rückkehr  $t_r^{(j)}$  gesondert dargestellt. Die möglichen Rückkehrzeiten  $t_r^{(2)}$  und  $t_r^{(3)}$  erstrecken sich jeweils über einen Bereich von annähernd einer halben Laserperiode ( $1T < t_r^{(2)} \leq 1.46T$  und  $1.46 < t_r^{(3)} \leq 2T$ ). Für die erste mögliche Rückkehrzeit  $t_r^{(1)}$  fällt der Bereich mit  $0.75T$  ( $0.25T < t_r^{(1)} \leq 1T$ ) größer aus. Die Grenzen der Bereiche lassen sich mit der in Abbildung 2.1.4 geschilderten grafischen Lösung zur Ermittlung der Rückkehrzeiten

nachvollziehen. Die Rückkehrzeiten  $t_r^{(j)}$  mit der jeweils höchsten kinetischen Rückkehrenergie sind durch die Kreismarkierungen gekennzeichnet. Dabei werden Rückkehrzeiten links der Markierungen als kurze Trajektorien, rechts davon als lange Trajektorien bezeichnet. Der Bereich der Zeiten  $t_r^{(1)}$  umfasst im Vergleich zum Bereich von  $t_r^{(2)}$  und  $t_r^{(3)}$  mehr kurze Trajektorien bis hin zu einer Flugzeit  $\tau = t_r^{(1)} - t_i \approx 0$ . Die maximale kinetische Rückkehrenergie der markierten Impulse entspricht  $\mathcal{E}_r^{max}(t_r^{(1)}) = 3.17U_p$ ,  $\mathcal{E}_r^{max}(t_r^{(2)}) = 1.54U_p$  und  $\mathcal{E}_r^{max}(t_r^{(3)}) = 2.41U_p$ . Zu beachten ist, dass die Maxima des Vektorpotenzials  $|A_z(t)|$  ebenfalls nahe der Rückkehrzeiten der höchsten kinetischen Rückkehrenergien lokalisiert sind. Findet durch Rückstreuung mit  $\theta_{Streu} = 180^\circ$  ein Vorzeichenwechsel des Rückkehrimpulses statt, können entsprechend  $\mathbf{p}_f^{streu} = -A_z(t_r) - p_z(t_r)$  durch eine erneute Beschleunigung im Laserfeld sehr hohe Impulse bzw. Energien erreicht werden. Die zurückgestreuten Elektronen bilden dabei in Elektronenimpulsverteilung entlang der Polarisationsachse des Laserfeldes das sogenannte „Plateau hochenergetischer Elektronen“ [20]. Die Flächen in (b) zeigen den Wichtungsfaktor  $W_i(t_i) \cdot W_r(t_i, t_r^{(j)})$  der Streuverteilungen  $W_{streu}$  für jede Rückkehrzeit. Für die in diesem Beispiel gewählten Parameter erreicht die Streuwahrscheinlichkeit  $W_r$  für die erste Rückkehr sehr hohe Werte nahe Eins. Durch die hohe Streuwahrscheinlichkeit während der ersten Rückkehr ist die Streuwahrscheinlichkeit für die späteren Rückkehrzeiten entsprechend Gleichung 3.3.10 stark reduziert.

Die Anteile der verschiedenen Rückkehrzeiten an der gesamten Streuverteilung wird in Abbildung 3.5.3 untersucht. Hierbei zeigt (a) die gesamte auf die  $x$ - $z$ -Ebene projizierte Streuverteilung  $W_{STREU}(p_x, p_z) = \int W_{STREU}(p_x, p_y, p_z) dp_y$ .

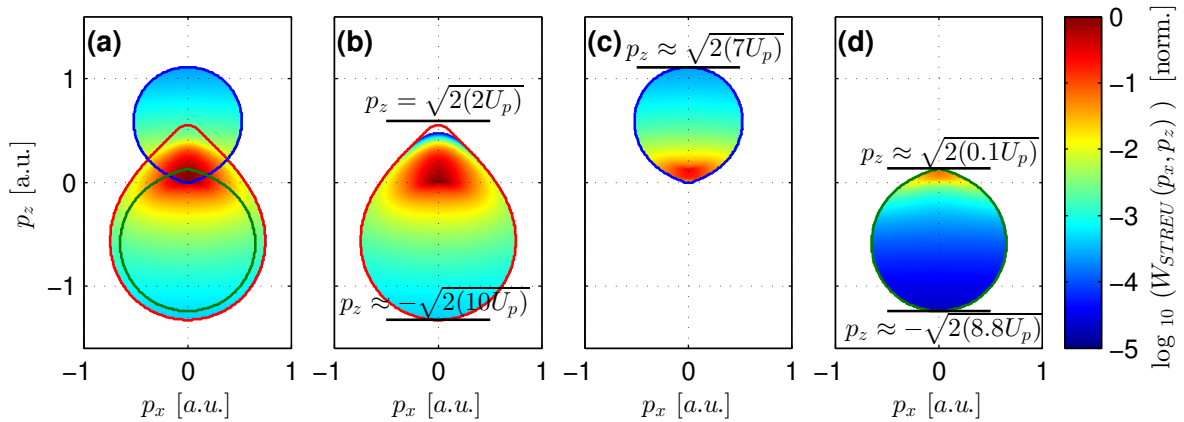


Abbildung 3.5.3: (a) Auf die  $x$ - $z$ -Ebene projizierte Verteilung gestreuter Elektronen  $W_{STREU}(p_x, p_z) = \int W_{STREU}(p_x, p_y, p_z) dp_y$ . (b), (c) und (d) zeigen die Projektionen der Streuverteilungen  $W_{STREU}(p_x, p_z)$  (Gl. 3.1.3), die entstehen, wenn jeweils ausschließlich über die Rückkehrzeiten  $t_r^{(1)}$ ,  $t_r^{(2)}$  und  $t_r^{(3)}$  summiert wird. Die waagerechten Linien markieren die  $p_z$ -Grenzwerte der Verteilungen entlang der Polarisationsachse des Laserfeldes. Die Konturen der Verteilungen (b), (c) und (d) sind ebenfalls in (a) eingezeichnet.

Die eingezeichneten Konturen entsprechen der Begrenzung der Projektion der Streuverteilung

$$W_{STREU}(\mathbf{p}) = \sum_{t_i} W_i(t_i) \sum_{t_r} W_r(t_i, t_r^{(j)}) \cdot W_{DCS}(\mathbf{p}_f^{streu})$$

(Gl. 3.1.3) die entstehen, wenn jeweils ausschließlich über die Rückkehrzeiten  $t_r^{(1)}$  (b),  $t_r^{(2)}$  (c) und  $t_r^{(3)}$  (d) summiert wird. Die Streuverteilungen sind tropfen- bzw. keulenförmig, wobei die

Tropfenform für die Rückkehrzeiten erster Ordnung am stärksten ausgeprägt ist (a). Das spitze Ende der Verteilung bei  $p_z \approx 0.5$  a.u. wird dabei durch die Streuverteilungen kurzer Trajektorien erzeugt. Die Verteilung der Rückkehrzeiten zweiter Ordnung (b) zeigt im Vergleich zu den Verteilungen erster (a) und dritter Ordnung (c) in die entgegengesetzte Richtung. Der Grund dafür ist das für Rückkehrimpuls und Vektorpotenzial invertierte Vorzeichen (siehe Abb. 3.5.2(a)). Die Grenzwerte der  $p_z$ -Impulse ( $p_z = \pm\sqrt{2(\mathcal{E}_{kin})}$ ) sind als waagerechte Linien eingezeichnet und im Bezug zu ihrer kinetischen Energie angegeben, wobei  $\mathcal{E}_{kin}$  in vielfachen des ponderomotiven Potenzials  $U_p$  angegeben wird. Die maximal erreichbaren kinetischen Energien sind  $\mathcal{E}_f^{max}(t_r^{(1)}) = 10.01U_p$ ,  $\mathcal{E}_f^{max}(t_r^{(2)}) = 7.03U_p$  und  $\mathcal{E}_r^{max}(t_r^{(3)}) = 8.77U_p$ . Die Grenzwerte am spitzen Ende der Verteilungen entsprechen jeweils einer Energie von  $2U_p$ ,  $0U_p$  und  $0.1U_p$ . Der zuletzt genannte Grenzwert trägt zu der sogenannten Niedrig-Energie-Struktur bei [21, 22], die in der Literatur üblicherweise als „Low-energy structure“ (LES) bezeichnet wird. Die Struktur entsteht durch einen sogenannten weichen Stoßprozess, bei dem das Elektron mit kleinem Impuls  $|\mathbf{p}_r| \approx 0$  a.u. zum Ursprung zurückkehrt. Aufgrund des geringen Rückkehrimpulses nimmt der totale Wirkungsquerschnitt stark zu, weshalb diese Trajektorien eine hohe Streuwahrscheinlichkeit  $W_r(t_i, t_r)$  aufweisen. Zudem ist die Streuverteilung in einem kleineren Impulsbereich lokalisiert, was die Sichtbarkeit der Struktur im Spektrum weiter erhöht. Weiterhin hängt die Sichtbarkeit und Breite der Struktur von der Wellenlänge des Laserfeldes ab. Für zunehmende Wellenlängen nehmen Sichtbarkeit und Breite der Niedrig-Energie-Struktur zu [21].

Um die Entstehung der Tropfenform der Verteilungen zu verdeutlichen, wird in Abbildung 3.5.4 für kurze Trajektorien der Übergang von weichen Rückstößen ( $|\mathbf{p}_r| \approx 0$ ) zu harten Rückstößen ( $\max|\mathbf{p}_r(t_r)|$ ) betrachtet. Es wird dabei jeweils nur die Kontur der sich für einzelne Kombinationen aus Ionisationszeit  $t_i$  und Rückkehrzeiten  $t_r^{(j)}$  ergebenden Streukugeln dargestellt. Dies ist insofern sinnvoll, da bei der Projektion einer dreidimensionalen kugelförmigen Verteilung auf eine Ebene (z.B. die Fläche eines Detektors) das meiste Signal nahe der Innenseite der Kontur zu finden ist, sofern die Verteilung hinreichend isotrop ist (siehe Abb. 2.2.3).

Zur Veranschaulichung sind in Abbildung 3.5.4 (a) zunächst nur die Konturen der Streuverteilungen mit dem höchsten Rückkehrimpuls ( $t_i = 0.05T$ ,  $t_r = 0.7T$ ) und einer Streuverteilung mit vergleichsweise niedrigem Rückkehrimpuls ( $t_i = 0.16$ ,  $t_r = 0.44T$ ) gezeigt. Die Kreiskonturen der Verteilungen haben den Radius  $|\mathbf{p}_r|$  und sind um  $-A_z(t_r)$  gegenüber dem Nullpunkt verschoben. In (b) werden analog zu (a) die Konturen der Streuverteilungen zu Kombinationen von  $t_i$  und  $t_r^{(j)}$  dargestellt, wobei der Farbton mit  $j$  korrespondiert. Durch die gleichmäßige Änderung von Radius und Auslenkung bildet sich die charakteristische Tropfenform der Gesamtverteilung heraus. Das Überlappen von Konturen mit ähnlicher Ionisationszeit führt außerdem zu deutlich sichtbaren Zinken, die der Kontur der Verteilung der jeweiligen Rückkehrordnung entsprechen (Abb. 3.5.3(b) bis (d)). Die Zinken sind in Abbildung 3.5.4(c) nochmals gesondert hervorgehoben.

Die entsättigten Konturen gehören zu Ionisationszeiten des folgenden Halbzyklus ( $0.5T < t_i \leq 1T$ ). Die Kombination aller Zinken wird als Gabelstruktur bezeichnet und kann als die Fortführung der Niedrig-Energie-Struktur abseits der Polarisationsachse verstanden werden [3]. In (c) sind außerdem die Elektronentrajektorien dargestellt, die durch Rückstreuung mit  $\theta_{streu} = 180^\circ$  den jeweils maximal möglichen finalen Impuls erreichen.

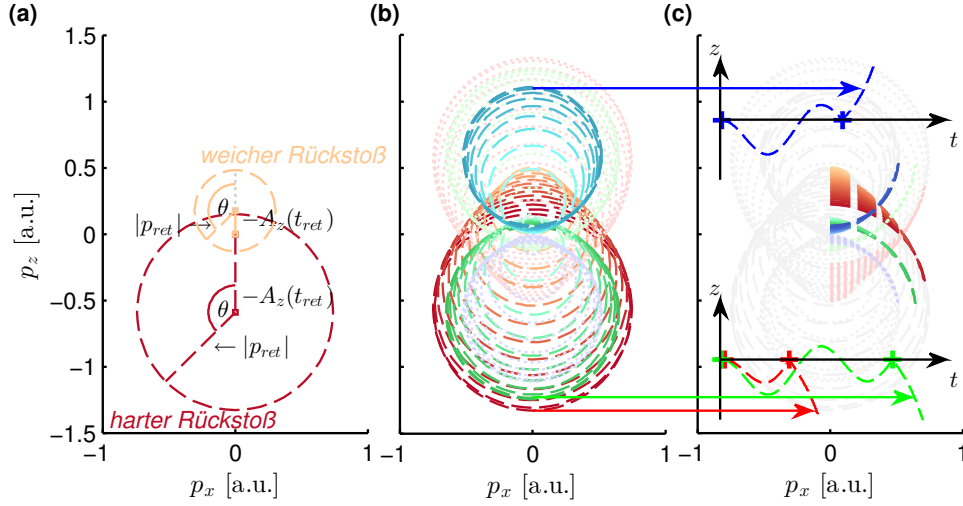


Abbildung 3.5.4: (a) zeigt die Kontur der kugelförmigen Streuerverteilung einer Trajektorie mit hoher Rückkehrenergie (harter Rückstoß) und einer Trajektorie mit eher niedriger Rückkehrenergie (weicher Rückstoß). Die Streukugeln mit Radius  $|\mathbf{p}_r|$  sind entgegen dem Vektorpotenzial  $A_z(t_r)$  verschoben. In (b) werden analog zu (a) die Konturen von Streukugeln verschiedener kurzer Trajektorien gezeigt. Dabei wird die Ionisationszeit  $t_i$  in gleichmäßigen Schritten variiert. Die Farben korrespondieren zur Streuung zu Rückkehrzeiten  $t_r^{(1)}$  (rötlich),  $t_r^{(2)}$  (bläulich) und  $t_r^{(3)}$  (grünlich). Im Hintergrund sind zudem Konturen gezeigt, die sich aus um  $0.5T$  verschobenen Ionisationszeiten ergeben (entsättigte gepunktete Kreise). Aufgrund der gleichmäßigen Änderung von  $-A_z(t_r)$  und  $|\mathbf{p}_r|$  überlappen sich Kreise mit ähnlicher Ionisationszeit, was zur Ausbildung einer klaren Gabelstruktur links und rechts der Photoelektronenverteilung führt. Dabei nimmt die Rückkehrenergie der beitragenden Trajektorien zu den Zinken der Struktur hin zu. (c) ist ähnlich zu (b), aber mit hervorgehobener Gabelstruktur. Zusätzlich wurde für jede Streuordnung die Trajektorie, die zum maximalen Impuls  $|p_z|$  führt, eingefügt. Dabei ist die Zeitachse horizontal und die  $z$ -Achse vertikal ausgerichtet. Ionisationszeit und Rückkehrzeit der Trajektorien sind durch ein + markiert.

An dieser Stelle wird die Ausführung der in den Photoelektronenspektren auftretenden Strukturen auf die bisher vorgestellten Strukturen beschränkt. Zusammengefasst sind dies für gestreute Elektronen das Plateau hochenergetischer Elektronen, die Niedrig-Energie-Struktur und die Gabelstruktur. Für direkte Elektronen sind es der  $2U_p$  Energie-Grenzwert entlang der Polarisationsachse und die Gauß-Verteilung senkrecht zur Polarisationsachse. Es ist anzumerken, dass alle diese Strukturen qualitativ vom Zielatom unabhängig sind und universelle Features des treibenden Laserfeldes darstellen. Sie sind also sensitiv auf Pulsform, Intensität, Wellenlänge, Ionisationszeit und Rückkehrzeit.

Die in diesem Kapitel vorgestellte Simulation eines erweiterten semiklassischen Modells wird verwendet, um die in Kapitel 5 und 6 präsentierten Messergebnisse zu analysieren. Die dargelegten Energie- bzw. Impulsgrenzwerte eignen sich außerdem dafür, die Intensität des Laserfeldes durch einen Abgleich der theoretischen Werte mit den gemessenen Werten zu kalibrieren. Zunächst wird aber im folgenden Kapitel 4 auf die experimentellen Methoden und die Datenauswertung eingegangen.

## 4 Versuchsaufbau und Messmethoden

In diesem Kapitel wird auf die technischen Aspekte der Experimente dieser Arbeit eingegangen. Ein Kernaspekt sind dabei die phasenabhängigen Messungen der Photoelektronenimpulsverteilungen mittels VMI-Spektroskopie, bei denen die relative Phase  $\varphi_{rel}$  von Zwei-Farben-Laserfeldern variiert wird. Das Kapitel ist in drei Abschnitte gegliedert.

In Abschnitt 4.1 werden das verwendete Lasersystem und seine Ausgangsparameter kurz vorgestellt. Davon ausgehend werden die Erzeugung und die Kontrolle von orthogonalen und parallelen Zwei-Farben-Feldern in einem kollinearen Zwei-Farben-Interferometer beschrieben. Abschnitt 4.2 beschäftigt sich mit der Detektion der Elektronenimpulsverteilungen. Dabei wird zunächst die Funktionsweise eines VMI-Spektrometers und die Konstruktion eines während der Dissertation entwickelten Hochenergie-VMI-Spektrometers erläutert. Anschließend wird der Ablauf der vollautomatisierten Datenerfassung beschrieben. Es werden außerdem verschiedene Techniken vorgestellt, die eingesetzt werden, um Rauschsignale zu minimieren und einen möglichst hohen Dynamikumfang (Quotient aus Maximum und Minimum) des Signals zu gewährleisten. Abschließend werden in Abschnitt 4.3 Analysemethoden der, von der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  des Zwei-Farben-Feldes abhängigen, Elektronenimpulsverteilung vorgestellt. Es wird außerdem auf die Rekonstruktion der dreidimensionalen Impulsverteilung eingegangen.

### 4.1 Erzeugung und Kontrolle von Zwei-Farben-Feldern

In den in dieser Arbeit vorgestellten Experimenten wurden sowohl Experimente mit Zwei-Farben-Feldern im sichtbaren Spektralbereich mit  $\lambda_{\omega} = 800 \text{ nm}$  und  $\lambda_{2\omega} = 400 \text{ nm}$  als auch Experimente im kurzwelligen infraroten Spektralbereich mit  $\lambda_{\omega} = 1800 \text{ nm}$  und  $\lambda_{2\omega} = 900 \text{ nm}$  durchgeführt. Um die Zwei-Farben-Felder zu erzeugen, wurden verschiedene Ausgänge des mehrstufigen Lasersystems im Labor der Arbeitsgruppe „Nichtlineare Optik“ der Friedrich-Schiller-Universität Jena verwendet. Dies ist in Abbildung 4.1.1 schematisch dargestellt.

#### Lasersystem

Zu Beginn werden mit einem kommerziell erhältlichen Titan:Saphir-Laser (FEMTOPOWER Compact Pro HP/HR) Laserpulse mit den in Abb. 4.1.1 genannten Parametern erzeugt. Dies geschieht, indem die fs-Pulse eines über den Kerr-Linsen-Effekt (passiv) modengekoppelten Oszillators [6], zeitlich gestreckt, in einem tiefgekühlten Verstärkermedium verstärkt und anschließend wieder zeitlich komprimiert werden [7, 8]. Diese Verstärkungstechnik wird als „Chirped Pulse Amplification“ (CPA) bezeichnet. Um kurze bandbreitenlimitierte Laserpulse zu erzeugen, werden die spektrale Phase und Amplitude dabei durch einen Akustooptischen Programmierbaren Dispersiven Filter (AOPDF) kontrolliert [101].

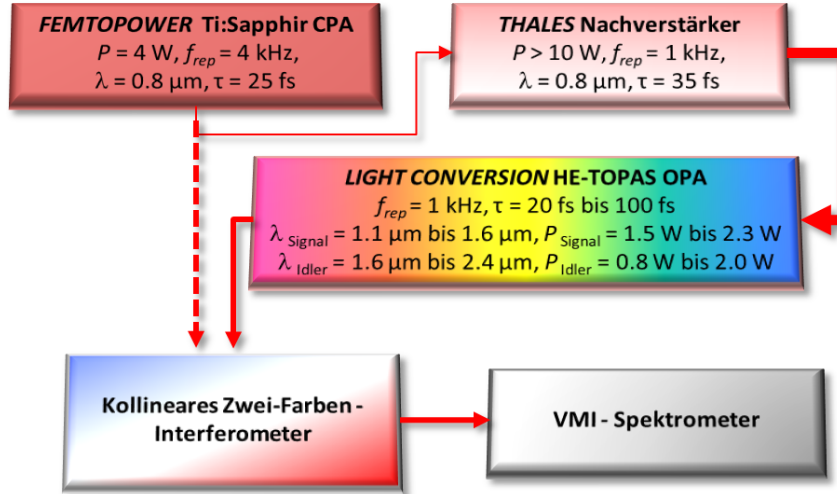


Abbildung 4.1.1: Schema des Titan:Saphir(Ti:Sa)-Lasersystems im Labor der Nichtlinearen Optik Friedrich-Schiller-Universität Jena. In einer ersten Stufe erzeugt ein kommerziell erhältlicher Ti:Sa-Laser (FEMTOPOWER Compact Pro HP/HR CEP) Laserpulse mit Pulsenergie  $\mathcal{E}_{puls} = P/f_{rep} = 1$  mJ, Repititionsfrequenz  $f_{rep} = 4$  kHz, Zentralwellenlänge  $\lambda \approx 798$  nm und Pulsdauer  $\tau = 25$  fs. Mit einem Strahlteiler werden 10% dieser Ausgangsleistung einer weiteren mehrstufigen Verstärkung (THALES Verstärker) unterzogen, wobei die Repititionsfrequenz auf  $f_{rep} = 1$  kHz reduziert wird. Die so verstärkten Pulse werden genutzt um einen kommerziellen durchstimmbaren Optisch-Parametrischen-Verstärker (HE-TOPAS) der Firma Light Conversion zu pumpen. Dieser erzeugt durch Differenzfrequenzerzeugung längerwellige Laserpulse variabler Wellenlängen  $1.1 \mu\text{m} \leq \lambda \leq 2.4 \mu\text{m}$ . Für die vorgestellten Experimente werden entweder die am FEMTOPOWER oder die am TOPAS ausgehenden Pulse verwendet, um in einem kollinearen Zwei-Farben-Interferometer ein Zwei-Farben-Feld zu erzeugen, welches in die Wechselwirkungszone eines VMI-Spektrometers fokussiert wird.

Während 90% der Femtopower-Ausgangsleistung für Experimente zur Verfügung stehen, werden durch einen Strahlteiler 10% der Leistung in einem weiteren mehrstufigen CPA-Verstärker (THALES) auf Pulsenergien größer als 10 mJ verstärkt. Die Pulsrepetitionsrate wird dabei auf 1 kHz reduziert. Die verstärkten Pulse werden verwendet, um einen durchstimmbaren optisch parametrischen Verstärker (OPA<sup>1</sup>) der Firma „Light Conversion“ (HE-TOPAS) zu pumpen. Dieser konvertiert über Differenzfrequenzerzeugung (DFG<sup>2</sup>) die mit Wellenlänge  $\lambda_{Pump} = 800$  nm eingehenden Laserpulse zu Pulsen längerer Wellenlänge  $\lambda_{Signal}$  und  $\lambda_{Idler}$  (Abb. 4.1.2). Die Konversion findet in einem nichtlinearen Medium d. h. einem BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>-Kristall (BBO) statt, wobei die Energieerhaltung  $\hbar\omega_{Pump} = \hbar\omega_{Signal} + \hbar\omega_{Idler}$  gilt. Die eingehende Signal-Wellenlänge fungiert dabei als „Seed“ (Keimling), um den DFG-Prozess zu stimulieren. Dieser Prozess wird in drei separaten Pumpstufen wiederholt, um die Idler-Wellenlänge immer weiter zu verstärken. Der Strahlengang des TOPAS ist in Abbildung 4.1.3 (modifizierte Darstellung nach [97]) im Detail dargestellt.

Der Seed wird generiert, indem ein Teil der Pumpleistung genutzt wird, um in einer Saphir-Scheibe Weißlicht zu generieren [102, 103]. Das Weißlicht wird anschließend in einem Glasblock zeitlich gestreckt, sodass sich die Wellenlänge als Funktion der Zeit ändert. Durch Variation

<sup>1</sup>engl.: optical parametric amplifier

<sup>2</sup>engl.: difference frequency generation



der zeitlichen Verzögerung zwischen Pump- und Weißlicht kann die Signal- und Idlerwellenlänge ( $\lambda_{Signal}$  und  $\lambda_{Idler}$ ) durchgestimmt werden. Während die ausgehende Signalwelle in der ersten und zweiten Verstärkerstufe geblockt wird, wird die während der ersten Verstärkung generierte Idlerwelle als Seed für die zwei weiteren Verstärkungsstufen verwendet. Nach der letzten Verstärkerstufe stehen sowohl Signal- als auch Idler-Wellenlänge für Experimente zur Verfügung. Eine ausführliche Charakterisierung der Strahlparameter ist [97] zu entnehmen. Zur Erzeugung von Zwei-Farben-Feldern stehen zwei kollineare Zwei-Farben-Interferometer zur Verfügung. Ein Interferometer ist auf die FEMTOPOWER-Wellenlänge von  $\lambda \approx 0.8 \mu\text{m}$  und eines auf eine Idler-Wellenlänge  $\lambda_{Idler} = 1.8 \mu\text{m}$  des TOPAs ausgelegt.

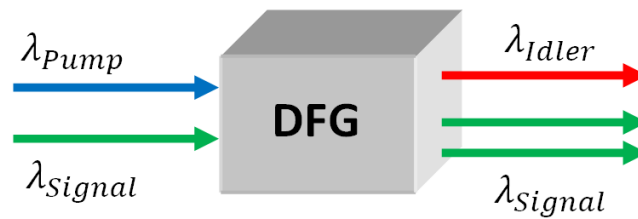


Abbildung 4.1.2: Schema der Differenzfrequenzerzeugung. Photonen der Wellenlänge  $\lambda_{Pump}$  werden im nichtlinearen Medium in zwei Photonen der Wellenlänge  $\lambda_{Signal}$  und  $\lambda_{Idler}$  konvertiert. Dabei gilt die Energieerhaltung  $\hbar\omega_{Pump} = \hbar\omega_{Signal} + \hbar\omega_{Idler}$ .

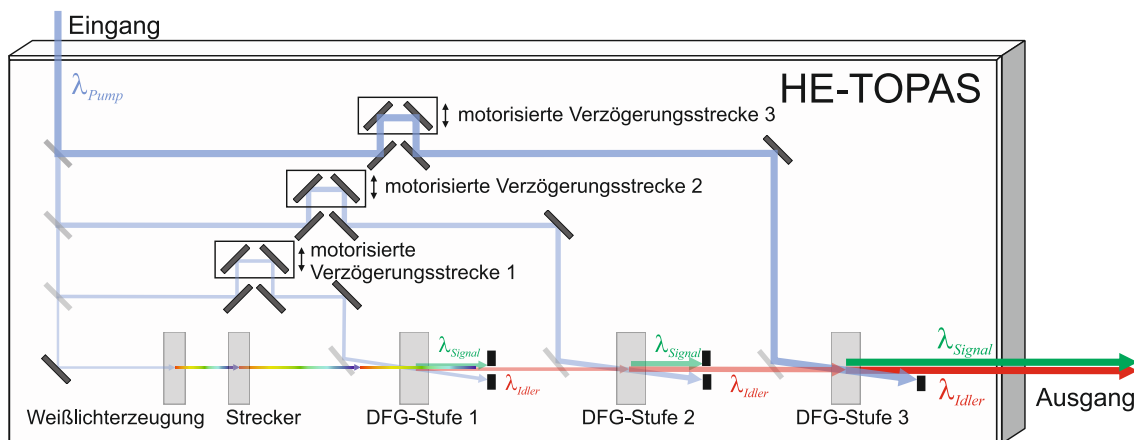


Abbildung 4.1.3: Schema der Strahlführung im HE-TOPAS (angepasst übernommen aus [97]). Der oben links eingehende Pumpstrahl wird in drei Pumparme sowie einen Arm, in dem in einer Saphir-Scheibe Weißlichterzeugung stattfindet, aufgeteilt. Durch zeitlich Streckung des Weißlichtes wird ein Seed-Signal erzeugt, bei dem sich die Wellenlänge als Funktion der Zeit ändert. Seed- und Pump-Strahl werden in einer ersten Vorverstärkerstufe in einem BBO-Kristall überlagert, wodurch Teile der Pumpleistung über Differenzfrequenzerzeugung in einen Idler- und einen Signal-Strahl übertragen werden. Die Wellenlängen  $\lambda_{Idler}$  und  $\lambda_{Signal}$  können durch Variation der zeitlichen Überlagerung von Pump- und Seed-Strahl durchgestimmt werden. Der Idler-Strahl wird in Verstärker 2 und 3 nochmals über den DFG-Prozess verstärkt. Am Ausgang stehen sowohl der in drei Stufen verstärkte Idler-Strahl als auch der im dritten Verstärker erzeugte Signal-Strahl für Experimente zur Verfügung.

## Kollineares Zwei-Farben-Interferometer

Um ein Zwei-Farben-Feld zu erzeugen und zu kontrollieren, sind verschiedene Ansätze denkbar. Zum Beispiel könnten zwei phasenstabile Laserpulse verschiedener Wellenlänge kohärent überlagert werden, oder ein Aufbau ähnlich eines Michelson-Interferometers verwendet werden. Bei letzterem würde die zweite Farbe in einem der Interferometerarme erzeugt werden. Während diese beiden Möglichkeiten eine hohe Flexibilität des Wellenlängenbereichs ermöglichen und sich sowohl Intensität als auch Polarisation beider Feldkomponenten durch die getrennten Strahlengänge einfach kontrollieren lassen, haben solche Setups auch einige Nachteile. Neben der zeitlichen Überlagerung beider Felder muss bei der Justage auch auf einen räumlichen Überlap der Felder geachtet werden. Außerdem muss das Setup mechanisch stabil sein bzw. es muss aktiv stabilisiert werden. Dies ist insbesondere der Fall, wenn zwei voneinander unabhängige Pulse kohärent überlagert werden sollen. Einfacher und eleganter ist es, einen kollinearen Aufbau für das Interferometer zu wählen [104], bei dem beide Felder phasengekoppelt sind und sich denselben Strahlengang teilen. Ein solcher Aufbau ist in Abbildung 4.1.4 in einer Version für orthogonale (a) und parallele Zwei-Farben-Felder (b) für  $\lambda_\omega = 0.8 \mu\text{m}$  und  $\lambda_{2\omega} = 0.4 \mu\text{m}$  vorgestellt.

Zusammengefasst besteht das Setup für orthogonale Polarisation beider Felder für die genannten Wellenlängen aus einem  $200 \mu\text{m}$  dicken BBO,  $3000 \mu\text{m}$  Kalzit,  $7920 \mu\text{m}$  Quarzglas und etwa  $1 \text{ m}$  Luft (gemessen ab BBO). Ist eine parallele Ausrichtung des Zwei-Farben-Feldes gewünscht, muss nach dem Kalzit eine Wellenplatte (von BHalle) verwendet werden (siehe Abb. 4.1.4 (b)). Diese muss speziell für die verwendeten Wellenlängen angefertigt werden, sodass sie auf das  $\omega$ -Feld als  $\lambda/2$  und auf das  $2\omega$ -Feld als  $\lambda$ -Wellenplatte wirkt. Unter dieser Voraussetzung ist keine perfekte achromatische Wellenplatte möglich, sodass aufgrund der Bandbreite  $\Delta\omega$  die Polarisation leicht elliptisch wird. Daher wird zusätzlich ein Dünnschicht-Polarisator (CODIX colorPol VIS-IR) verwendet, um die Linearität des parallelen Zwei-Farben-Feldes sicherzustellen. Es wird nun im Detail auf die verschiedenen Elemente des Setups für orthogonale Zwei-Farben-Felder eingegangen.

Zunächst wird ein Teil des eingehenden Feldes  $\mathbf{E}_\omega$  in einem nichtlinearen Kristall (BBO) durch Erzeugung der zweiten Harmonischen  $\mathbf{E}_{2\omega}$  frequenzverdoppelt. Eine Voraussetzung für eine effektive Konversion ist, dass für den Brechungsindex im Medium die Phasenanpassungsbedingung  $n(\lambda_\omega) = n(\lambda_{2\omega})$  erfüllt wird. Sonst würden sich aufgrund der unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten  $v_p = c/n$  die Lichtwellen, die in verschiedenen Volumenelementen des Kristalls erzeugt werden, im Mittel destruktiv überlagern. Diese Bedingung lässt sich in doppelbrechenden Medien wie einem BBO-Kristall erreichen, bei dem der Brechungsindex von der Polarisation des Feldes abhängt. Bei einem uniaxialen Kristall erfährt der Anteil des Feldes, der orthogonal zur optischen Achse des Kristalls polarisiert ist, den Brechungsindex  $n_o$ . Dieser Teil des Feldes wird als ordentlicher Strahl bezeichnet. Die Anteile mit einer Polarisation orthogonal zu der Polarisation des ordentlichen Strahls werden als außerordentlicher Strahl bezeichnet. In Abhängigkeit des Winkels zwischen der optischen Achse des Kristalls und der Polarisation des außerordentlichen Strahls erfährt dieser einen effektiven Brechungsindex [105] von

$$n_{eff}(\theta, \lambda) = \left( \frac{\sin^2(\theta)}{n_{ao}^2(\lambda)} + \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2(\lambda)} \right)^{-1/2}. \quad (4.1.1)$$

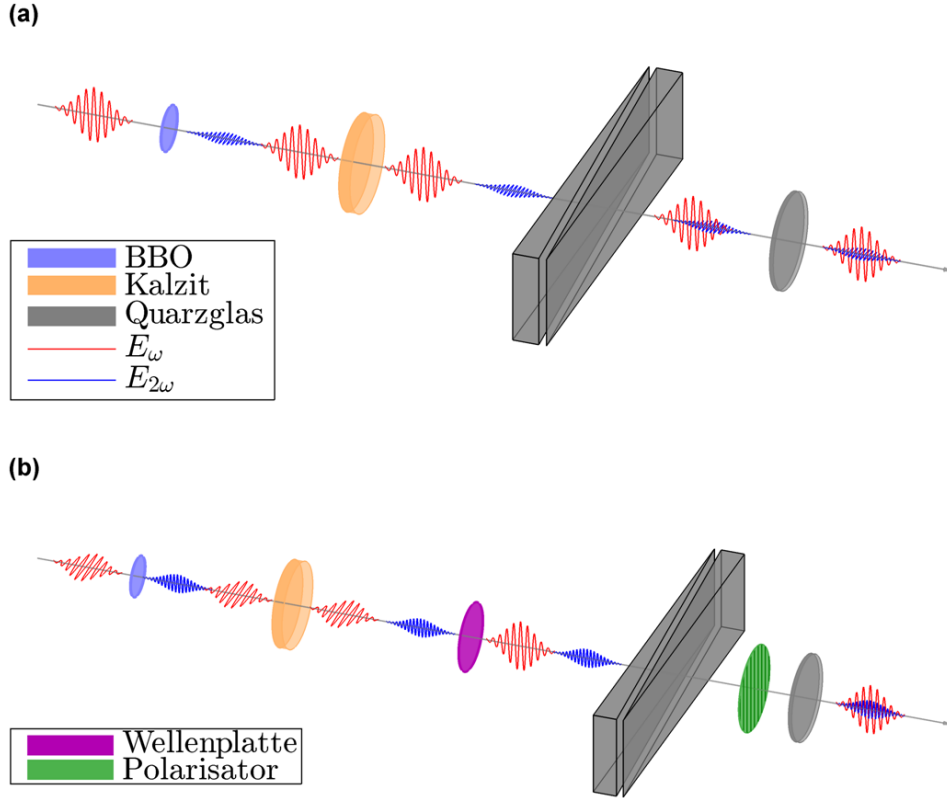


Abbildung 4.1.4: Schema eines kollinearen Interferometers zur Erzeugung von orthogonalen (a) und parallelen Zwei-Farben-Feldern (b). Das eingehende Feld  $\mathbf{E}_\omega$  wird in einem nichtlinearen Kristall ( $\text{BaB}_2\text{O}_4$  bzw. BBO) durch die Erzeugung der zweiten Harmonischen teilweise frequenzverdoppelt, wobei die Polarisation der zweiten Harmonischen  $\mathbf{E}_{2\omega}$  senkrecht zur  $\mathbf{E}_\omega$  steht. Die Gruppengeschwindigkeitsunterschiede zwischen  $\mathbf{E}_\omega$  und  $\mathbf{E}_{2\omega}$  in den Komponenten des Strahlengangs (BBO, Vakuumfenster, Wellenplatten etc.) werden durch einen doppelbrechenden Kalzitkristall kompensiert, sodass beide Komponenten in der Zielzone zeitlich überlappen. Der räumliche Überlap ist dabei durch den kollinearen Aufbau stets sichergestellt. Die relative Phase  $\varphi_{rel}$  zwischen der Trägerwelle von  $\mathbf{E}_\omega$  und  $\mathbf{E}_{2\omega}$  wird durch motorisierte Glaskeile kontrolliert. Die parallele Ausrichtung des Zwei-Farben-Feldes wird durch die Verwendung einer maßgefertigten Wellenplatte erreicht, die für  $\mathbf{E}_\omega$  eine Halbwellenplatte und für  $\mathbf{E}_{2\omega}$  ein ganzzahlige Wellenplatte darstellt. Aufgrund der Bandbreite der Laserpulse erzeugt die Wellenplatte eine leichte Elliptizität, weshalb zusätzlich ein Polarisator verwendet wird, um die lineare Polarisation zu erhalten.

Es lässt sich ein Phasenanpassungswinkel  $\theta_p$  finden, für den  $n_o(\theta_p, \lambda_\omega) = n_{eff}(\theta_p, \lambda_{2\omega})$  gilt. Da der ordentliche und außerordentliche Strahl senkrecht zueinander polarisiert sind, findet die Konversion nur für  $\mathbf{E}_\omega \perp \mathbf{E}_{2\omega}$  effizient statt.

Werden mit Gleichung 2.3.7 die Gruppengeschwindigkeiten von  $\mathbf{E}_\omega$  und  $\mathbf{E}_{2\omega}$  im BBO-Kristall berechnet, erhält man  $v_g(\lambda_\omega) = 0.178 \mu\text{m fs}^{-1}$  und  $v_g(\lambda_{2\omega}) = 0.172 \mu\text{m fs}^{-1}$ . Bei Transmission durch den verwendeten BBO der Dicke  $L = 200 \mu\text{m}$  kommt es also zu einem Zeitversatz von

$$\Delta t_g = \frac{L}{v_g(\lambda_\omega)} - \frac{L}{v_g(\lambda_{2\omega})} = -39 \text{ fs} \quad (4.1.2)$$

zwischen den Einhüllenden der beiden Feldkomponenten.

Dieser Zeitversatz wird durch nachfolgende Elemente im Strahlengang, wie Vakuumfenster, Wellenplatten, etc. noch vergrößert. Beispielsweise vergrößert 1 mm Quarzglas den Zeitversatz um  $\Delta t_g = -156$  fs. Materialspezifische Werte für Gruppen- und Phasengeschwindigkeit sowie der resultierenden Zeitverzögerungen sind Tabelle 4.1 und 4.2 zu entnehmen. Die Werte wurden unter Verwendung der Sellmeier-Gleichung

$$n^2(\lambda) = 1 + \frac{B_1\lambda^2}{\lambda^2 - C_1} + \frac{B_2\lambda^2}{\lambda^2 - C_2} + \frac{B_3\lambda^2}{\lambda^2 - C_3} \quad (4.1.3)$$

berechnet, die den wellenlängenabhängigen Brechungsindex  $n(\lambda)$  liefert. Die materialspezifischen Koeffizienten können unter [106] eingesehen werden.

Tabelle 4.1: Gruppengeschwindigkeit  $v_g$  [ $\mu\text{m fs}^{-1}$ ] und Phasengeschwindigkeit  $v_p$  [ $\mu\text{m fs}^{-1}$ ] für die Wellenlängen  $\lambda_\omega = 0.8 \mu\text{m}$  und  $\lambda_{2\omega} = 0.4 \mu\text{m}$  in verschiedenen Materialien. Bei Transmission durch ein Material der Dicke  $L$  kommt es zu einer Zeitverzögerung  $\Delta t_g$  [fs] und  $\Delta t_p$  [fs] zwischen Gruppe und Phase beider Wellenlängen.

Material	$L$ [mm]	$v_g(\lambda_\omega)$	$v_g(\lambda_{2\omega})$	$\Delta t_g$	$v_p(\lambda_\omega)$	$v_p(\lambda_{2\omega})$	$\Delta t_p$
BBO	1	0.1780	0.1720	-193.9	0.1805	0.1805	0.0
Quarzglas	1	0.2043	0.1980	-155.6	0.2063	0.2039	-56.0
Kalzit	1	0.1791	0.1945	449.9	0.1818	0.2002	504.8
Luft	1000	0.2997	0.2997	-78.7	0.2997	0.2997	-24.9

Tabelle 4.2: Wie Tabelle 4.1 für Wellenlängen  $\lambda_\omega = 1.8 \mu\text{m}$  und  $\lambda_{2\omega} = 0.9 \mu\text{m}$

Material	$L$ [mm]	$v_g(\lambda_\omega)$	$v_g(\lambda_{2\omega})$	$\Delta t_g$	$v_p(\lambda_\omega)$	$v_p(\lambda_{2\omega})$	$\Delta t_p$
BBO	1	0.17922	0.1802	31.5	0.1825	0.18252	0.0
Quarzglas	1	0.2047	0.2047	0.7	0.2081	0.2065	-36.3
Kalzit	1	0.1801	0.2012	-566.3	0.1840	0.2024	-616.8
Luft	1000	0.2997	0.2997	-14.1	0.2997	0.2997	-4.7

Um beide Felder in der Zielzone zeitlich zu überlappen, muss der Zeitversatz  $\Delta t_g$  aller Elemente im Strahlengang kompensiert werden ( $\sum \Delta t_g = 0$ ). Dies wird durch einen doppelbrechenden Kalzit-Kristall erreicht, bei dem  $n_o(\lambda_{2\omega}) < n_{ao}(\lambda_\omega)$  gilt. Der Kristall ist so ausgerichtet, dass  $\mathbf{E}_\omega$  parallel zur optischen Achse des Kristalls polarisiert ist. Es werden 450 fs pro mm Kalzit kompensiert. Durch gezielte Anpassung der Dicke von Quarzglas im Strahlengang mithilfe von Glaskeilen kann der zeitliche Überlap beider Feldkomponenten  $\mathbf{E}_\omega$  und  $\mathbf{E}_{2\omega}$  gezielt kontrolliert werden. Die Glaskeile dienen auch dazu, die relative Phase zwischen beiden Feldern zu kontrollieren. Maßgebend für die relative Phase  $\varphi_{rel}$  ist die Phase der Trägerwellen zueinander. Bei Transmission durch ein Medium der Dicke  $L$  folgt mit den unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten  $v_p(\lambda_\omega) = c/n(\lambda_\omega)$  und  $v_p(\lambda_{2\omega})$  die Phasenverschiebung

$$\Delta\varphi_{rel} = \left( \frac{L}{v_p(\lambda_\omega)} - \frac{L}{v_p(\lambda_{2\omega})} \right) \cdot \frac{2\pi}{T_{2\omega}} = \Delta t_p \cdot \frac{2\pi}{T_{2\omega}}. \quad (4.1.4)$$

Bei Wellenlängen  $\lambda_\omega = 0.8 \mu\text{m}$  und  $\lambda_{2\omega} = 0.4 \mu\text{m}$  muss die Quarzglasdicke um  $23.81 \mu\text{m}$  geändert werden, um eine Phasenverschiebung um  $2\pi$  zu erreichen. Mit den verwendeten Glaskeilen mit einem Steigungswinkel von  $4^\circ$  entspricht dies einer Verschiebung eines Keils um  $340.5 \mu\text{m}$ .

Sollen die längeren Wellenlängen  $\lambda_{Idler}$  des TOPAS verwendet werden um Zwei-Farben-Felder bei  $\lambda_\omega = 1.8 \mu\text{m}$  und  $\lambda_{2\omega} = 0.9 \mu\text{m}$  zu erzeugen, muss das Setup angepasst werden. Zum einen muss der Phasenanpassungswinkel des BBO-Kristalls durch Verkippen oder Austausch mit einem entsprechend geschliffenem BBO an die Wellenlänge  $\lambda_\omega$  angepasst werden. Zum anderen ergeben sich deutlich abweichende Werte für die Gruppengeschwindigkeiten zwischen  $v_g(\lambda_\omega)$  und  $v_g(\lambda_{2\omega})$ . Aufgrund der in diesem Wellenlängenbereich sehr geringen Gruppengeschwindigkeitsunterschiede und der kompensierenden Wirkung von Luft ist ein dediziertes Kompensationselement nicht notwendig. Für das verwendete Setup lässt sich eine Überlappung beider Feldkomponenten mit einem  $250 \mu\text{m}$  dicken BBO,  $9215 \mu\text{m}$  Quarzglas und etwa  $1 \text{ m}$  Luft (gemessen ab BBO) erreichen. Um eine Phasenänderung  $\Delta\varphi_{rel} = 2\pi$  zu erreichen, muss die Quarzglasdicke um  $82.72 \mu\text{m}$  variiert werden. Dies entspricht einer Verschiebung eines Glaskeils um  $1182.9 \mu\text{m}$ . Für parallele Polarisierung des Zwei-Farben-Feldes wird eine weitere maßgefertigte Wellenplatte (BHalle) benötigt. Als Polarisator wird ein CODIXX colorPol IR verwendet.

Nach dem kollinearen Interferometer wird das (kollimierte) Zwei-Farben-Felder mit einem sphärischen Spiegel in die Interaktionszone eines VMI-Spektrometers fokussiert, wo es zur Wechselwirkung zwischen den zu untersuchenden Atomen und dem starken Zwei-Farben-Feld kommt. Je nach Pulsenergie und verwendeter Brennweite des Fokussierspiegels werden Intensitäten von bis zu  $1 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  erreicht. Die bei der Wechselwirkung starker Laserfelder mit Atomen bzw. Molekülen entstehenden Photoelektronen- bzw. Ionenimpulsverteilungen werden von dem VMI-Spektrometer erfasst.

## 4.2 Detektion der Elektronenimpulsverteilung

Bei einem VMI-Spektrometer handelt es sich um ein elektrostatisches Linsensystem, welches Teilchen gleicher Ladung, Masse und Geschwindigkeit stets auf denselben Punkt eines positionssensitiven Detektors abbildet. Die Abbildung entspricht dabei der zweidimensionalen Projektion der dreidimensionalen Impulsverteilung auf die Ebene des Detektors. Das Konzept der Abbildung von Photoelektronen bzw. -ionen auf einen positionssensitiven Detektor geht auf die Winkel aufgelösten Messungen von Ionenimpulsverteilungen durch Chandler und Houston [107] von 1987 zurück. Die ersten Systeme entsprachen in etwa positionssensitiven Flugzeitspektrometern, bei denen die Ionenimpulsverteilung durch die Beschleunigung im homogenen elektrischen Feld (erzeugt durch geladene leitfähige Netze) auf einem Detektor abgebildet wurden. Die Abbildungsleistung dieser Systeme war jedoch aufgrund der Sensitivität der Abbildung der Impulsverteilung auf den Entstehungsort der Ladungen und der an den Netzen auftretenden Beugungseffekte begrenzt. Die Auflösung konnte mit dem von Eppink und Parker vorgestellten Aufbau [108] deutlich verbessert werden, indem anstatt von Netzen ringförmige Elektroden verwendet werden. Dabei wird die Sensitivität der Impulsverteilung auf den Entstehungsort der Ladung durch die entstehenden elektrostatischen Linsen kompensiert. Diese Art von Spektrometer wird als „Velocity-Map-Imaging“-Spektrometer bezeichnet. Den Ausführungen in [108, 109] folgend wird kurz der Aufbau und die Abbildungseigenschaften eines VMI-Spektrometers vorgestellt.

## VMI-Spektrometer

Die Standardvariante des von Eppink und Parker entwickelten VMI-Spektrometers (Abbildung 4.2.1) besteht aus drei Ring-Elektroden. Einer Repeller-, Extraktor- und Erdelektrode, an denen jeweils die Spannung  $V_{rep}$ ,  $V_{extr}$  und  $V_0$  anliegt. Die Repellerelektrode dient der Beschleunigung der Teilchen hin zum Detektor, die Extraktorelektrode der Fokussierung der Verteilung. Für die Fokussierung muss ein von der Elektrodengeometrie abhängiges Verhältnis  $V_{extr}/V_{rep} < 1$  eingestellt werden. An der Erd-Elektrode liegt üblicherweise die Spannung  $V_0 = 0\text{ V}$  an. Als Detektor wird meist eine Kombination aus einer Mikrokanalplatte [110] (MCP<sup>3</sup>) und einem Phosphorschirm verwendet.

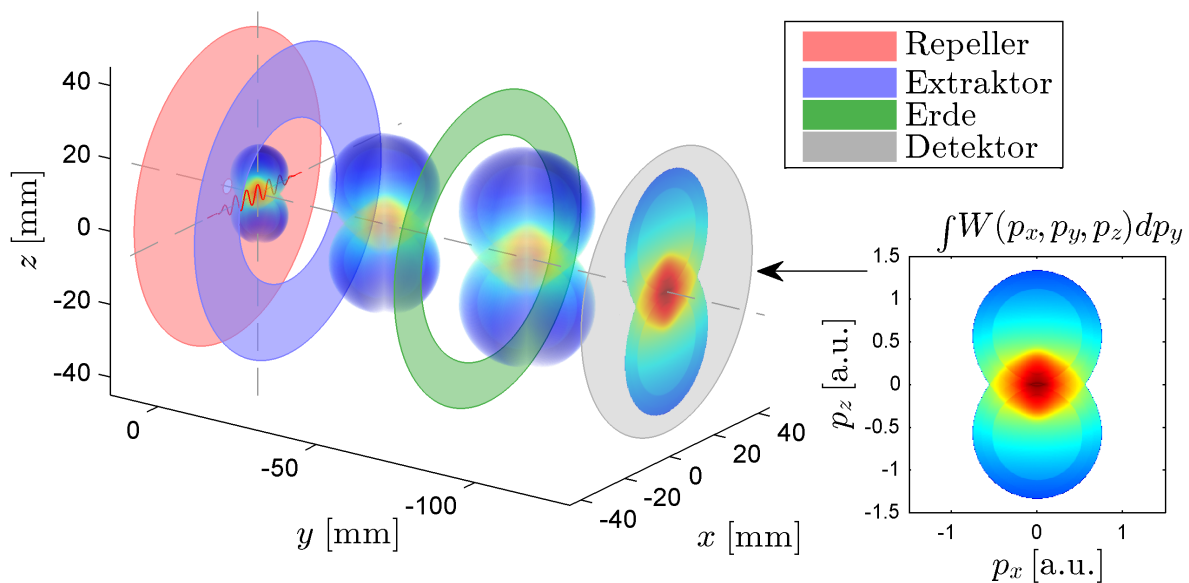


Abbildung 4.2.1: Standardgeometrie eines VMI-Spektrometers nach Eppink und Parker [108]. Eine im Volumen um den Nullpunkt erzeugte Photoelektronengeschwindigkeitsverteilung bzw. Impulsverteilung  $W(p_x, p_y, p_z)$  wird durch die von drei Elektroden erzeugten elektrostatischen Linsen auf einen positionssensitiven Detektor projiziert. Dabei werden Teilchen gleicher Ladung, Masse und Geschwindigkeit stets auf dieselbe Position des Detektors fokussiert, unabhängig von ihrem Entstehungsort um den Nullpunkt. Der Detektor erfasst die projizierte zweidimensionale Verteilung  $W(p_x, p_z) = \int W(p_x, p_y, p_z) dp_y$ .

Bei der MCP (Abb. 4.2.2) handelt es sich um eine Glas- oder Keramikscheibe, die von Kanälen mit einem Durchmesser  $\leq 25\ \mu\text{m}$  durchzogen ist. Diese Kanäle sind mit einer Halbleiter-Beschichtung versehen, sodass jeder Kanal unter dem Einfluss einer Beschleunigungsspannung zwischen Vorder- und Rückseite der MCP als Sekundärelektronenverstärker der auftreffenden Primärladungen bzw. -elektronen wirkt. Durch Stapeln zweier gegeneinander verdrehter MCPs (gekoppelte Kanäle bilden Chevron-Form) können die Primärladungen bis zu einem Faktor von  $10^7$  verstärkt werden (Abb. 4.2.2). Durch anschließende Beschleunigung der Sekundärelektronen auf einen Phosphorschirm können so auch Einzelereignisse visuell sichtbar gemacht und durch eine handelsübliche CCD<sup>4</sup>- bzw. CMOS<sup>5</sup>-Kamera observiert werden.

<sup>3</sup>engl.: microchannel plate

<sup>4</sup>engl.: charge-coupled device

<sup>5</sup>engl.: complementary metal-oxide-semiconductor

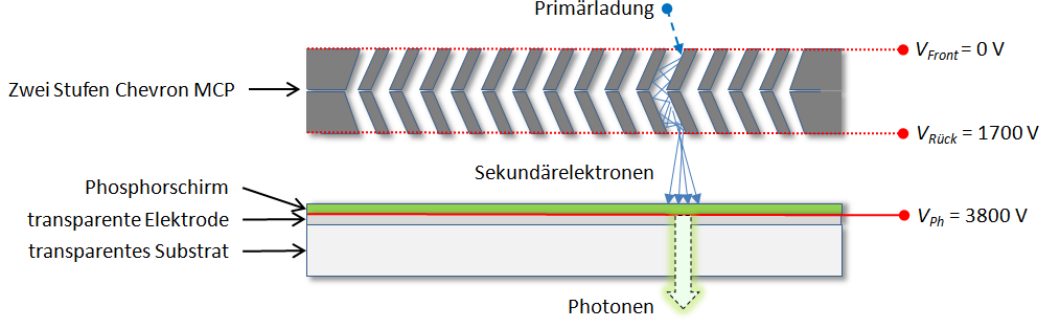


Abbildung 4.2.2: Schema eines positionssensitiven MCP-Phosphorschirm-Detektors. Eine eingehende Primärladung erzeugt in einer zweistufigen MCP (Chevron Layout) eine Lawine von Sekundärelektronen, die auf einen Phosphorschirm beschleunigt werden. Dies führt am Auftreffpunkt zum Aufleuchten der Phosphorbeschichtung, deren Photonen mit einer üblichen CCD- oder CMOS-Kamera erfasst werden können.

Die observierte zweidimensionale Abbildung auf dem Detektor entspricht der Projektion der Impulsverteilung  $W(p_x, p_z) = \int W(p_x, p_y, p_z) dp_y$  (siehe Abb. 4.2.1). Die radiale Position  $R = \sqrt{x^2 + z^2}$  auf dem Detektor skaliert dabei näherungsweise linear mit der radialen Geschwindigkeit  $v_R = \sqrt{v_x^2 + v_z^2}$  (daher die Namensgebung) bzw. mit dem radialen Impuls  $p_R$ :

$$R \approx \sqrt{\frac{m}{2qV_{rep}}} NL \cdot v_R = \sqrt{\frac{1}{2mqV_{rep}}} NL \cdot p_R. \quad (4.2.1)$$

$N$  ist der Vergrößerungsfaktor, der sich aus der Geometrie des Spektrometers und dem Verhältnis der Elektrodenspannungen  $V_e/V_r$  ergibt.  $L$  ist die Länge der freien Flugstrecke im Spektrometer,  $q$  ist die Ladung und  $m$  ist die Masse der Teilchen. Durch Anpassen der Polarität der an den Elektroden anliegenden Spannungen können sowohl Ionen als auch Elektronen detektiert werden. Wie gut die Linearität der Abbildung erfüllt ist, hängt von der Geometrie und den Elektrodenspannungen des jeweiligen Spektrometers ab.

Fasst man die spektrometerspezifischen Werte  $N$  und  $L$  zu einem Kalibrierungsfaktor  $\alpha = \left(\frac{1}{NL}\right)^2$  zusammen, folgt

$$p_R \approx \sqrt{2m \cdot \alpha \cdot qV_{rep}} \cdot R \quad (4.2.2)$$

$$\mathcal{E}_R \approx \alpha \cdot q \cdot V_{rep} \cdot R^2. \quad (4.2.3)$$

Der Kalibrierungsfaktor  $\alpha$  kann durch empirische Simulationen mit der Software SIMION oder durch Messung der Impulsverteilung bekannter Systeme bestimmt werden.

Die in der Flugzeit der Teilchen im VMI-Spektrometer enthaltenen Informationen über die Verteilung der  $p_y$ -Impulse geht bei der Verwendung eines MCP-Phosphorschirm-Detektors normalerweise verloren. Es gibt jedoch die Möglichkeit, mithilfe von „MCP-Delay-Line-Detektoren“ [111] (z.B. von RoentDek) oder spezieller Flugzeitkameras den Detektionszeitpunkt von Einzelereignissen zu erfassen ([112, 113]). Entsprechende Kameras sind sehr teuer ( $\approx 100$  k€) und bieten bisher nur eine geringe Auflösungen von bis zu  $324 \times 324$  Pixel. Ein MCP-Delay-Line-Detektor hat den Nachteil, dass nur wenige Ereignisse gleichzeitig erfasst werden können.

Es gibt jedoch verschiedene Techniken, um auch mit einem herkömmlichen MCP-Phosphorschirm-Detektor die vollständige dreidimensionale Impulsverteilung zu erfassen bzw. zurückzugewinnen. Zum einen können mittels „Slicing“ [114–116] durch schnelles Ein- und Ausschalten der MCP-Versorgungsspannung einzelne schmale Scheiben aus der dreidimensionalen Ionenimpulsverteilung erfasst werden. Durch Verschieben des Zeitpunkts der MCP-Schaltung kann auf diese Weise die komplette dreidimensionale Verteilung vermessen werden. Für Photoelektronen kann eine MCP jedoch nicht schnell genug geschaltet werden, um schmale Scheiben der Verteilung zu erfassen, da bei typischen Beschleunigungsspannungen von einigen kV die Flugzeit nur wenige Nanosekunden beträgt. Dieser Umstand bereitet für Photoelektronen auch bei der Nutzung von Delay-Line-Detektoren oder Flugzeitkameras Probleme.

Eine Lösung hierfür ist die Anwendung tomographischer Methoden [117–119]. Dabei werden durch Rotation der Laserpolarisation, Projektionen der Impulsverteilung aus verschiedenen Blickrichtungen erfasst, aus denen die dreidimensional Impulsverteilung rekonstruiert wird. Liegt eine Zylindersymmetrie der Impulsverteilung vor, genügt sogar bereits die Messung der Projektion senkrecht zur Symmetrieachse, um über inverse Abel-Transformation [120–124] die dreidimensionale Impulsverteilung zu rekonstruieren.

Bei den durchgeführten Experimenten kamen zwei verschiedene VMI-Spektrometer mit MCP-Phosphorschirm-Detektoren zum Einsatz. Zum einen wurde ein vorhandenes, von Matthias Kübel nach dem klassischen Design von Epink und Parker entworfenes VMI-Spektrometer verwendet, welches Elektronen mit Energien bis zu 80 eV erfassen kann [125]. Zum anderen wurde im Rahmen dieser Dissertation ein Hochenergie-VMI-Spektrometer konstruiert und in Betrieb genommen. Gegenüber des vorhandenen VMI-Spektrometers wird die akzeptierte Elektronenenergie um einen Faktor von 4 auf etwa 320 eV erweitert. Die größere Energiereichweite ist aufgrund der Skalierung  $U_p \propto \lambda^2$  (Gl. 2.1.23) des ponderomotiven Potentials mit der Wellenlänge notwendig, um auch bei längeren Wellenlängen wie 1800 nm die hohen Impulse gestreuter Elektronen erfassen zu können.

## Konstruktion eines Hochenergie-VMI-Spektrometers

Die Konstruktion des Hochenergie-VMI-Spektrometers basiert auf einer leicht modifizierten Version des von N. G. Kling et al. [2] entwickelten und mit einer dicken Linse ausgestatteten VMI-Spektrometers. Gegenüber des klassischen mit drei Elektroden ausgestatteten Aufbaus werden bei dieser Variante zwischen Extraktor- und Erd-Elektrode weitere Elektroden eingefügt und damit die räumliche Ausdehnung des fokussierenden Feldes erhöht. Diese „weichere“ Fokussierung verringert den energieabhängigen Abbildungsfehler<sup>6</sup> und erlaubt eine exzellente Auflösung über einen großen Energiebereich. Gegenüber dem vorhandenen Kübel-VMI-Spektrometer wird die Vervierfachung des Energiebereichs bei gleichbleibender maximaler Repellerspannung von  $V_{rep} = -10$  kV durch eine Verdopplung des Detektorradius erreicht ( $\mathcal{E}_R \propto R^2$ ). Abbildung 4.2.3 zeigt den Querschnitt der mit der Software SIMION 8.0.4 entworfene Geometrie der elektrostatischen Linsen inklusive simulierter Elektronentrajektorien bei der maximal vorgesehenen Repeller-Spannung von  $V_{rep} = -10$  kV.

---

<sup>6</sup>Analog dazu führt bei optischen Linsen eine weiche Fokussierung mit langer Brennweite zu schwächeren chromatischen Aberrationen als eine harte Fokussierung mit kurzer Brennweite.



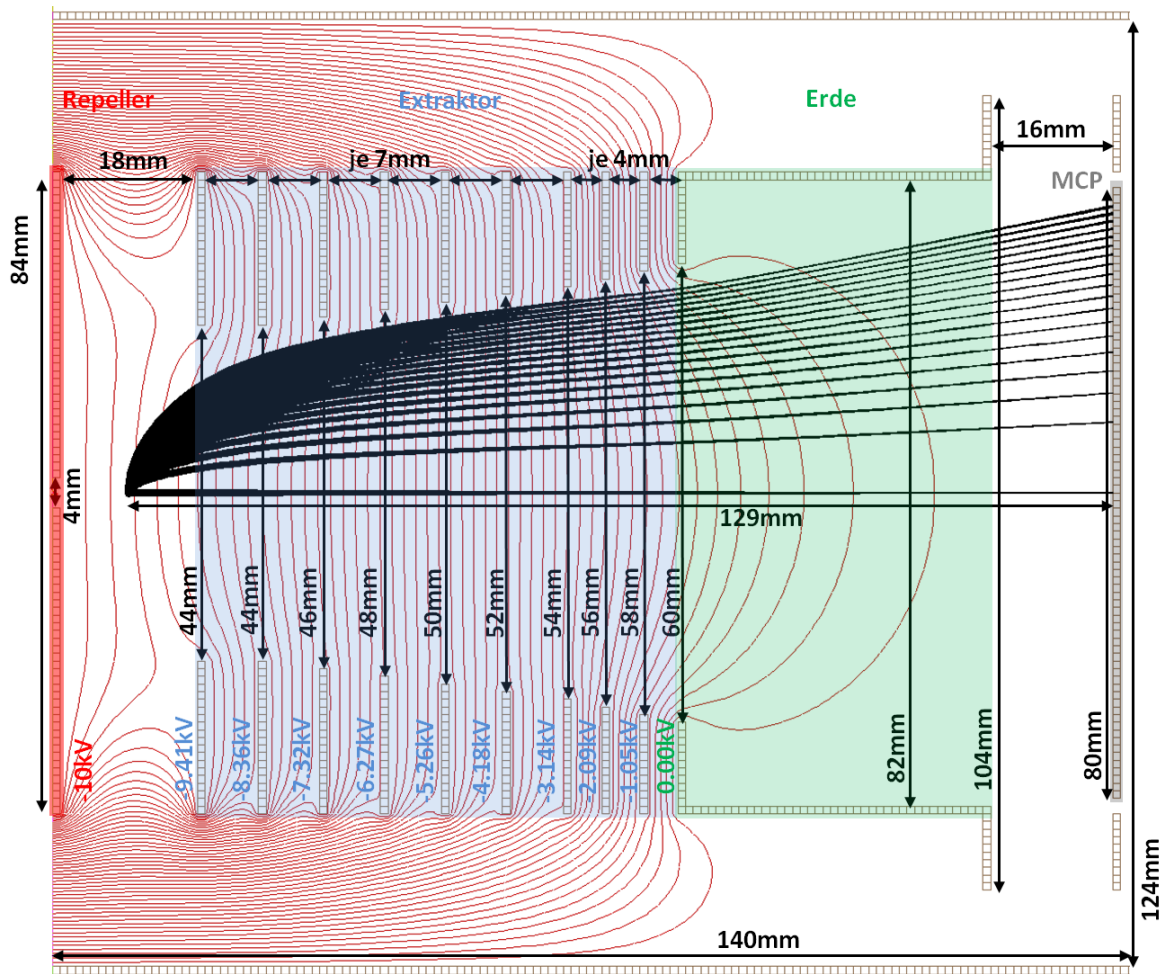


Abbildung 4.2.3: Bildschirmaufnahme des Querschnitts des elektrostatischen VMI-Linsensystems aus der Simulationssoftware SIMION 8.0.4. Am Beispiel von Elektronen mit unterschiedlicher kinetischer Startenergie (Richtung vertikal nach oben) wird die Abbildung auf den Detektor in Abhängigkeit von der Startposition der Elektronen simuliert. Zusätzlich sind Informationen über die Geometrie und die angelegten Spannungen angegeben. Der Spannungsverlauf des elektrischen Feldes kann anhand der eingezeichneten roten Höhenlinien qualitativ nachvollzogen werden.

Dabei werden Elektronen mit verschiedener kinetischer Energie (0 eV bis 360 eV in Schritten von 20 eV) in senkrechter Richtung nach oben zufällig innerhalb eines Startvolumens platziert und die Abbildung auf dem Detektor simuliert. Das Startvolumen entspricht einer großzügigen Abschätzung des Ionisationsvolumens, d. h. einem Zylinder von 2 mm Länge und 0.1 mm Durchmesser. Zusätzlich sind die Maße für Abstand, Außen- und Innendurchmesser der Ringelectroden sowie die jeweils anliegenden Spannungen angegeben. Für die Spannungsversorgung wird ein Hochspannungsnetzteil mit zwei Spannungsausgängen verwendet. Ein Ausgang wird für die Spannungsversorgung der Repellerelektrode und ein Anschluss für die Spannungsversorgung der Extraktorelektroden verwendet. Dabei werden die Spannungsabstufungen an den Extraktorelektroden durch eine Reihenschaltung bestehend aus neun identischen 10 M $\Omega$  Widerständen realisiert. Für die Fokussierung der Verteilung muss also analog zum klassischen Elektrodendesign nur das Spannungsverhältnis zwischen Repeller- und der ersten Extraktorelektrode  $V_{extr}/V_{rep}$  eingestellt werden.

Der Spannungsverlauf ist durch die roten Höhenlinien qualitativ dargestellt, wobei die dicke Linse zwischen Repeller und Erde deutlich zu erkennen ist. Gegenüber der Geometrie in [2] wurde der Abstand zwischen Repeller- und der ersten Extraktorelektrode auf 18 mm vergrößert, um auch bei Verwendung des kollimierten Thales-Laserstrahl mit einem Durchmesser  $\sim 12$  mm eine Rückfokussiergeometrie zu ermöglichen. Um die Beeinflussung der Elektronenflugbahnen durch das Erdmagnetfeld zu unterbinden, wird das Linsensystem in einem Mu-Metalltopf platziert, welcher durch seine hohe Permeabilitätszahl  $\mu_r > 50000$  magnetische Felder abschirmt. Für die Elektroden wurde 1 mm starker nichtmagnetischer Edelstahl verwendet. Die Außendurchmesser wurden kompakt gehalten, damit das gesamte System von einem CF160-Vakuumkruz aufgenommen werden kann. Eine dreidimensionale CAD-Zeichnung des kompletten Systems inklusive Vakuumkammer und Gasquelle ist in Abbildung 4.2.4 dargestellt.

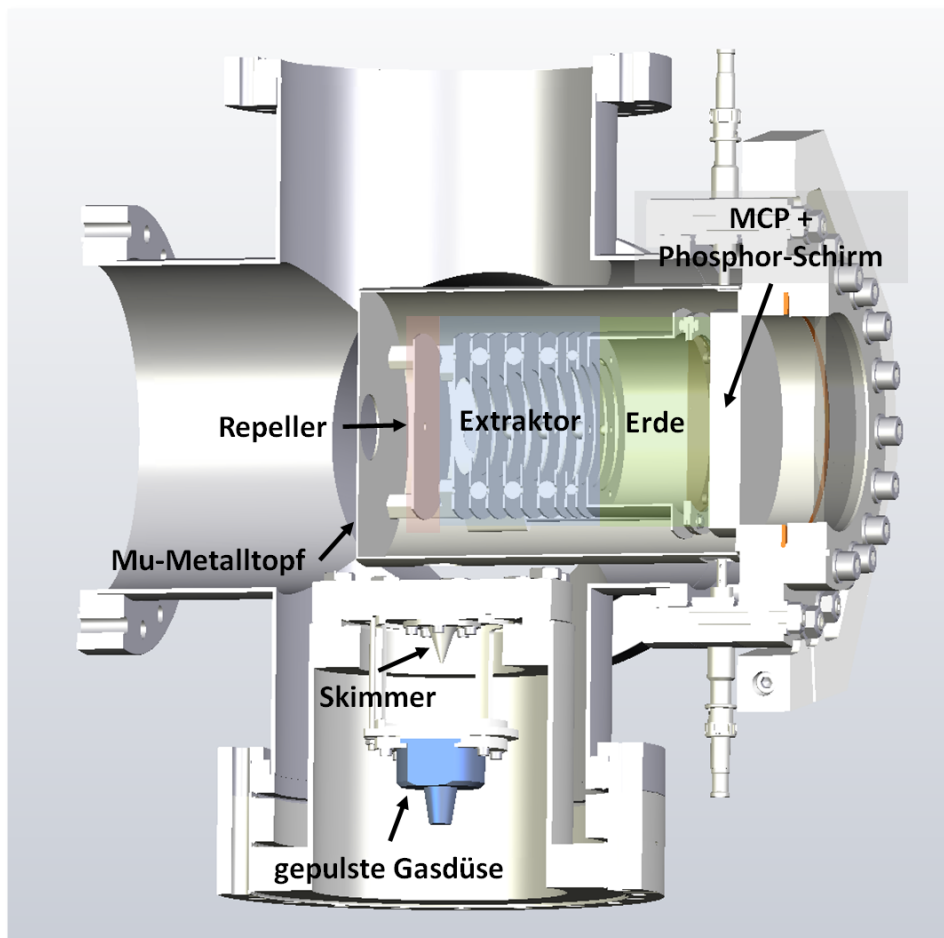


Abbildung 4.2.4: CAD-Zeichnung des Hochenergie-VMI-Spektrometers inklusive Gasquelle und Mu-Metalltopf. Als Gasquelle wird eine gepulste Gasdüse (ACPV2 [126]) eingesetzt, die durch einen Skimmer von der VMI-Kammer separiert wird.

Um nun die Abbildungseigenschaften genauer zu untersuchen, wird eine zu Abbildung 4.2.3 analoge Simulation der Elektronentrajektorien mit feineren Energieschritten ausgewertet. Abbildung 4.2.5 (a) zeigt den mittleren Radius  $R$  in Abhängigkeit von der kinetischen Startenergie und Abb. 4.2.5 (b) die Standardabweichung  $\Delta R$ , die sich aus der Simulation von 1000 zufälligen Anfangspositionen im Fokusvolumen für jede Startenergie ergibt.

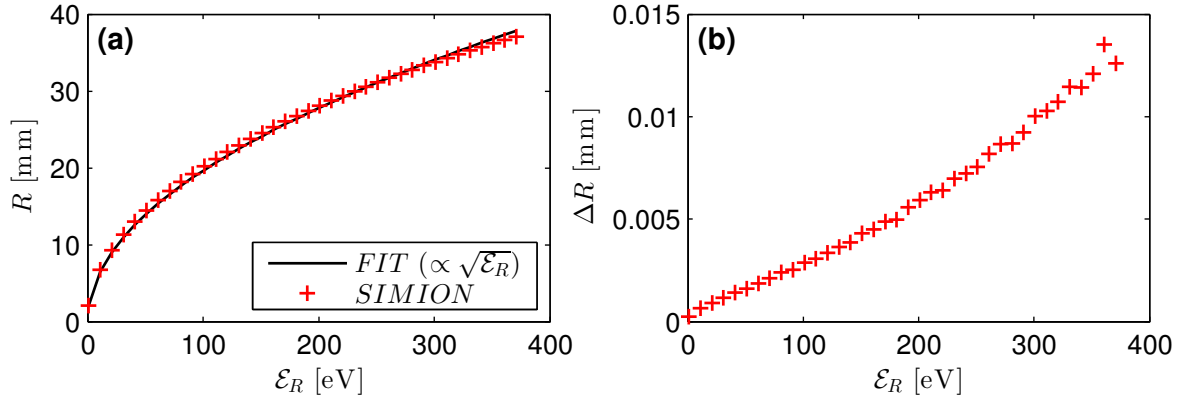


Abbildung 4.2.5: Simulierte Abbildungseigenschaften des Hochenergie-VMI-Spektrometers für Elektronen bei  $V_{rep} = -10000$  V und  $V_{extr} = -9477$  V. Für jede Startenergie  $\mathcal{E}_R$  parallel zur Detektoroberfläche werden 1000 Trajektorien mit zufälliger Startposition innerhalb eines Zylinders mit 2 mm Länge und Durchmesser 0.1 mm simuliert. (a) zeigt die mittlere radiale Position  $R$  auf dem Detektor in Abhängigkeit von der kinetischen Energie  $\mathcal{E}_R$ . Durch Fitten von  $R = \sqrt{\mathcal{E}_R}/(\alpha \cdot 10 \text{ kV})$  kann der Kalibrierfaktor  $\alpha$  bestimmt werden (Gl. 4.2.4). (b) bildet den Abbildungsfehler  $\Delta R$  ab, der sich aus der Standardabweichung der Auftreffposition auf dem Detektor ergibt.

Entsprechend Gleichung 4.2.3 folgt

$$R = \sqrt{\frac{\mathcal{E}_R}{\alpha q V_{rep}}} \quad (4.2.4)$$

sowie

$$\frac{\Delta \mathcal{E}_R}{\mathcal{E}_R} = 2 \frac{\Delta R}{R}. \quad (4.2.5)$$

Der Kalibrierfaktor  $\alpha = 0.0259 \text{ eV kV}^{-1} \text{ mm}^{-2}$  wird durch Fitten bestimmt. Interessant ist hierbei, dass ein Fit auch mit der Ableitung von Gleichung 4.2.3 möglich ist. Es genügt also, die relativen Energieabstände zweier oder mehrerer Features im Impulsspektrum eines Referenzsystems zu kennen, um den Kalibrierfaktor über eine Messung zu bestimmen. Die um die Photonenenergie der Trägerwelle separierten ATI-Peaks von Photoelektronen sind dafür besonders geeignet.

Mit dem Abbildungsfehler  $\Delta R$  kann der relative Fehler  $\Delta \mathcal{E}_R/\mathcal{E}_R$  in Abhängigkeit von der Extraktorspannung dargestellt werden (Abbildung 4.2.6).

Bei einer Extraktorspannung  $V_{extr} = -9477$  V nimmt der relative Fehler der Energie stetig und näherungsweise linear mit der Energie zu. Der Grund dafür ist eine energieabhängige Verschiebung des Fokuspunktes, sodass der Fokuspunkt höherer Energien vor dem Detektor liegt (siehe Abb. 4.2.3). Der Abbildungsfehler steht in Analogie zur chromatischen Aberration optischer Linsen. Die Divergenz ist jedoch klein, sodass der relative Fehler nur langsam ansteigt und deutlich unter 0.1 % bleibt. Durch Absenken der Extraktionsspannung kann die Abbildung der hochenergetischen Elektronen optimiert werden. Dies führt jedoch schnell zu einer deutlichen Verschlechterung der Auflösung im Bereich niedriger Energien. Zudem wird man in der experimentellen Umsetzung die Abbildung eher im Bereich der niedrigen Energien optimieren, da dort das Signal stark genug ist, um in Echtzeit beobachtet zu werden.

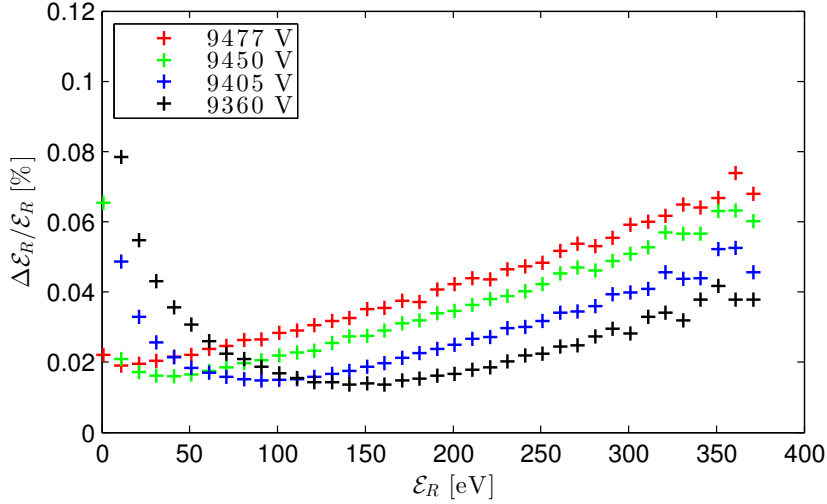


Abbildung 4.2.6: Simulierter relativer Fehler  $\Delta\epsilon_R/\epsilon_R$  in Abhängigkeit von kinetischer Energie  $\epsilon_R$  parallel zur Detektoroberfläche und der Extraktionsspannung  $V_{extr}$ . Anzahl der simulierten Trajektorien und Variation der Startposition ist identisch zu Abb. 4.2.5.

Der dargestellte relative Fehler ist stark von der erlaubten Variation der Startpositionen der Trajektorien abhängig. Eine Simulation mit einem nochmals größeren zylindrischen Startvolumen mit Durchmesser 0.4 mm und Länge 6 mm führt jedoch immer noch zu einem relativen Fehler kleiner als 0.3%. Radius und Länge des Startvolumens sind dabei im Vergleich zum erwarteten Fokusradius ( $\sim 25 \mu\text{m}$ ) und der Rayleighlänge ( $\sim 1 \text{ mm}$ ) eines Gauß'schen Fokus um ein Vielfaches größer, weshalb dies eine sehr konservative Abschätzung ist. Der Fokus wurde für Brennweite  $f = 12.5 \text{ cm}$ , Wellenlänge  $\lambda = 1.8 \mu\text{m}$  und kollimierten Strahldurchmesser  $D = 6 \text{ mm}$  berechnet.

Weiterhin wurde die Stabilität des Systems auf die Justage der Fokusposition überprüft. Abweichungen von 1 bis 2 mm von der zentralen Position zwischen erster Extraktorelektrode und der Repellerelektrode führen zu einer leichten Variation des Kalibrierfaktors  $\alpha$ . Es sind jedoch keine signifikanten Änderungen des relativen Fehlers  $\Delta\epsilon_R/\epsilon_R$  zu beobachten.

## Datenerfassung

Für die Datenerfassung der Ereignisse auf dem Phosphorschirm wurden zwei verschiedene Kamerasysteme verwendet. Für das vorhandene Kübel-VMI-Spektrometer ist eine gekühlte 12 bit CCD-Kamera (pco1300) mit  $1392 \times 1040$  Pixeln und einer Sensordiagonale von 11.14 mm vorhanden. Der Dynamikumfang dieser Kamera ist jedoch mit 2667:1 aufgrund des bei CCD-Kameras hohem Ausleserausens von  $6 e^-/\text{Pixel}$  (quadratisches Mittel) bei einer Speicherkapazität von  $16000 e^-/\text{Pixel}$  recht niedrig ( $16000 e^-/6 e^- = 2667$ ). Dies führt dazu, dass der Sensor schon nach kurzer Belichtungszeit in Sättigung geht. Für das neu konstruierte Hochenergie-VMI-Spektrometer wurde eine tiefgekühlte ( $-30^\circ\text{C}$ ) CMOS-Kamera (Andor Neo 5.5) mit größerer Auflösung von  $2560 \times 2160$  Pixeln, größerer Sensordiagonale von 21.8 mm und höherem Dynamikumfang 30000:1 gekauft. Sowohl Ausleserausens von  $1 e^-/\text{Pixel}$  als auch der Dunkelstrom von  $0.015 e^-/\text{Pixel/s}$  sind erheblich niedriger als bei der pco1300 Kamera, was zu einem deutlich

besseren Signal-Rausch-Verhältnis (SNR<sup>7</sup>)

$$\text{SNR} = \frac{\text{Signal}}{\sqrt{\text{Signal} + \text{Ausleserauschen} + \text{Dunkelstrom} \cdot t}} \quad (4.2.6)$$

führt, wobei  $\text{Signal} = \text{Quanteneffizient} \cdot \text{Photonfluss} \cdot t$  gilt.

Als Objektiv wird ein  $f = 16 \text{ mm}$  Objektiv mit Blende 2 verwendet (Kowa LM16XC). Das Objektiv wurde anhand einer Reihe von Kriterien (Arbeitsabstand, Blendenzahl, Verzeichnung, Nutzung der Sensorfläche etc.) ausgewählt, um eine möglichst flächendeckende Abbildung des Phosphorschirms auf die vorhandene Sensorfläche bei größtmöglichem Photonfluss zu erreichen. Bei dieser Kamera-Objektiv-Kombination erzeugen Einzelereignisse auf dem Phosphorschirm ein etwa 700-1000 Zähler starkes Signal, wobei das Rauschlevel bei maximal 120 Zählern liegt. Daher führen längere Messzeiten trotz des größeren Dynamikumfangs dieser Kamera ebenfalls zu einer Sättigung des Sensors. Dieses Problem kann mit zwei verschiedenen Methoden umgangen werden. Zum einen können mehrere Aufnahmen unterschiedlicher Belichtungszeit zu einer Aufnahme mit hohem Dynamikumfang kombiniert werden; zum anderen können Aufnahmen kurzer Belichtungszeit akkumuliert werden.

Bei der zuerst genannten Methode wird das Signal in Aufnahmen kürzerer Belichtungszeit linear auf die längste Belichtungszeit der Aufnahmereihe hochskaliert, um die gesättigten Bereiche der Aufnahme zu ersetzen. Die Methode wird in Abbildung 4.2.7 anhand eines eindimensionalen Beispiels verdeutlicht.

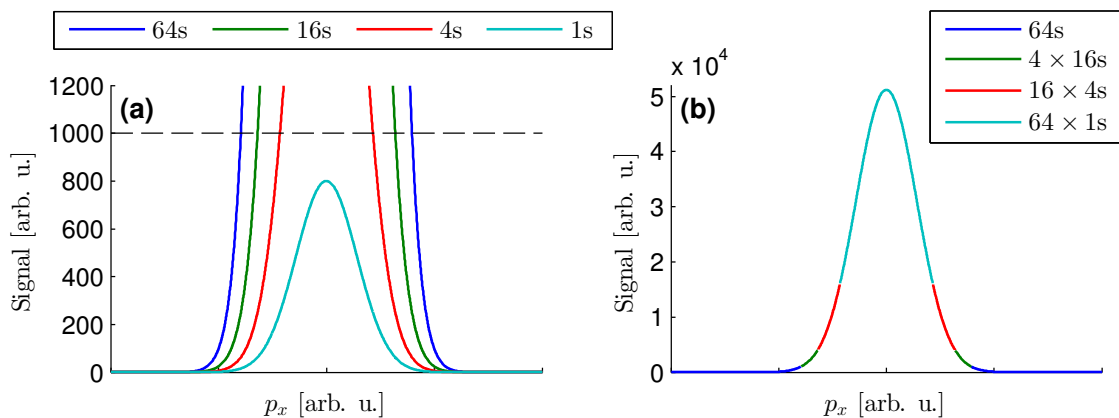


Abbildung 4.2.7: Eindimensionales Beispiel zur Messung von Signalen mit einem Dynamikumfang, der den Dynamikumfang des Detektors (hier 1000:1) übersteigt. Aus einer Messreihe mit unterschiedlichen Messzeiten (a) wird ein Signal mit vollständigem Dynamikumfang rekonstruiert (b), das einer idealen Messung bei der längsten Messzeit entspricht. Dies geschieht, indem die gesättigten Bereiche (Signal  $> 1000$  arb. u.) der Einzelmessung mit der längsten Messzeit (64s) durch das linear hochskalierte Signal einer Messung mit kürzerer Messzeit ersetzt werden. Es wurde farblich kenntlich gemacht, welche Messung in welchem Bereich des rekonstruierten Signals verwendet wird.

Für typische Photoelektronenspektren sind Messreihen mit einer Variation der Belichtungszeit um den Faktor 3-4 geeignet. Abbildung 4.2.8 zeigt die Kamerarohdaten einer VMI-Messung (Neon) einer solchen Messreihe (a-d), sowie das rekonstruierte Spektrum (e) in logarithmischer

<sup>7</sup> engl.: signal-to-noise ratio

Darstellung. Der Dynamikumfang von (e) ist mit über viereinhalb Größenordnungen erheblich größer als der Dynamikumfang der Einzelmessungen von etwa zwei Größenordnungen.

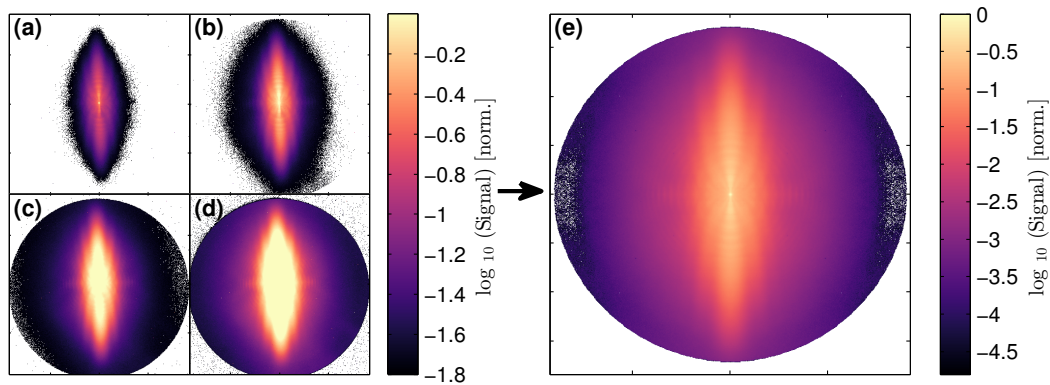


Abbildung 4.2.8: VMI-Messung des Photoelektronenspektrums von Neon in einem linear polarisierten Laserfeld ( $\lambda_\omega = 0.8 \mu\text{m}$ ,  $I_\omega = 2.5 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ). Gezeigt wird eine logarithmische Darstellung der Kamerarohdaten bei Belichtungszeiten 10 s (a), 30 s (b), 90 s (c), 270 s (d). Aus den Einzelmessungen wird eine Messung mit hohem Dynamikumfang rekonstruiert (e).

Diese Methode zur Erweiterung des Dynamikumfangs ist jedoch nur bis zu einer maximalen Messzeit bis etwa 15 Minuten anwendbar, da sich mit zunehmender Belichtungszeit das Streulicht des Phosphorschirms zu einem immer stärkeren Hintergrundsignal akkumuliert.

Die zweite Methode, um den geringen Dynamikumfang der Kamera zu umgehen, unterliegt dieser Einschränkung nicht. Dabei werden Aufnahmen kurzer Belichtungszeit ( $t < 1 \text{ s}$ ) akkumuliert. Die Gesamtbelichtungszeit entspricht dabei der Anzahl der Aufnahmen multipliziert mit der Einzelbelichtungszeit. Dies ist in Abbildung 4.2.9 veranschaulicht.

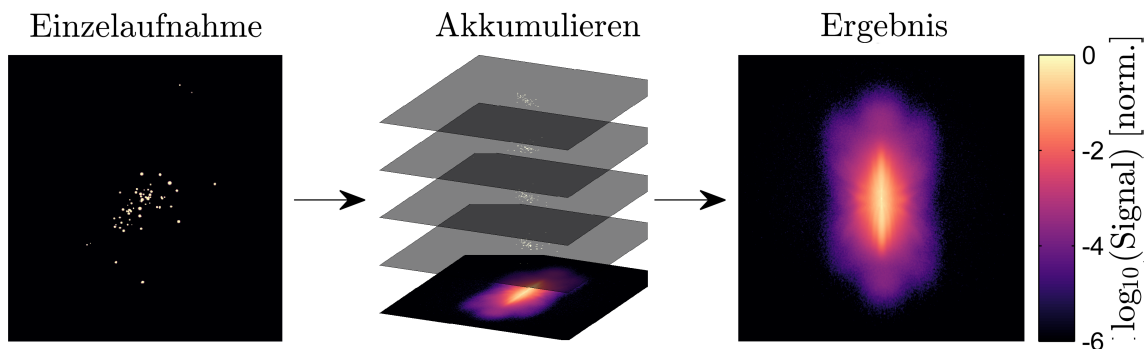


Abbildung 4.2.9: Darstellung der Erfassung von Photoelektronenspektren durch Akkumulation von Einzelaufnahmen kurzer Belichtungszeit. Die Einzelaufnahmen werden vor der Akkumulation durch Subtraktion eines Schwellwertes vom Hintergrundrauschen bereinigt, sodass nur echte Messereignisse überleben. Als Ergebnis ist hier ein Photoelektronenspektrum von Xenon gezeigt, das über 67 min akkumuliert wurde. Mehr Details zur Messung sind in Kapitel 6 gegeben.

Dabei werden durch Subtraktion eines Schwellwertes die Streuphotonen, sowie das Rauschen der Kamera und der MCP diskriminiert. Dies ist möglich, wenn das Signal eines Einzelereignis deutlich über dem Rauschlevel der Kamera und des Detektors liegt. Es ist somit prinzipiell eine rauschfreie Messung möglich. Jedoch treten während der Messung neben den zu untersuchenden Photoelektronen auch Hintergrundelektronen verschiedenen Ursprungs auf.

Das größte Problem bereiten dabei Elektronen, die durch Feldüberhöhungen an den Elektrodenkanten bzw. den Vakkumdurchführungen der Spannungsversorgung ins Kontinuum tunneln. Ursache dafür ist die sehr kompakte Bauweise des elektrostatischen Linsensystems, das nur wenig Platz für Vakuumdurchführung und die stromführenden Verbindungen bietet. Diese Hintergrundelektronen konnten zwar durch keramische Isolierung der stromführenden Kabel reduziert werden, jedoch sollte man trotzdem in Betracht ziehen, das System auf ein CF200-Vakuumkreuz umzurüsten. Damit stünde mehr Platz für die Spannungsversorgung zur Verfügung und es würden auch Repellerspannungen  $|V_{rep}| > 10 \text{ kV}$  ermöglicht, wodurch auch die Energiereichweite des Spektrometers erweitert würde. Eine weitere Quelle für Hintergrundelektronen ist die Autoionisation von Atomen im elektrostatischen Feld, die durch die Wechselwirkung mit dem Laserfeld angeregt wurden. Auch Vakuumdruckmessgeräte auf Basis des Glühkathoden-Messsystems nach dem Bayard-Alpert-Prinzip emittieren Elektronen und sollten während einer Messung ausgeschaltet werden.

Unabhängig von der Quelle können die Hintergrundelektronen anhand der zeitlichen Korrelation mit dem Laserpuls sehr gut von den Photoelektronen unterschieden werden, da die Hintergrundelektronen entweder zeitlich verzögert (Autoionisation) oder statistisch über die gesamte Messzeit verteilt eintreffen. Durch die Verwendung eines zeitlichen Filters, d. h. dem schnellen Ein- und Ausschalten des MCP-Detektors (Gating) über den Ankunftszeitraum der Photoelektronen, kann das Signal der Hintergrundelektronen drastisch reduziert werden. Das „Gating“ wird hier mit einem BEHLKE Push-Pull MOSFET Hochspannungsschalter (GHTS 60) realisiert, der die Spannungsversorgung der rückseitigen MCP-Elektrode zwischen einem geerdeten Anschluss und einer Hochspannungsversorgung umschaltet. Abbildung 4.2.10 zeigt den Spannungsverlauf der MCP-Rückseite zusammen mit der Schaltzeit (Trigger) und dem zeitlichen Eintreffen der Photoelektronen.

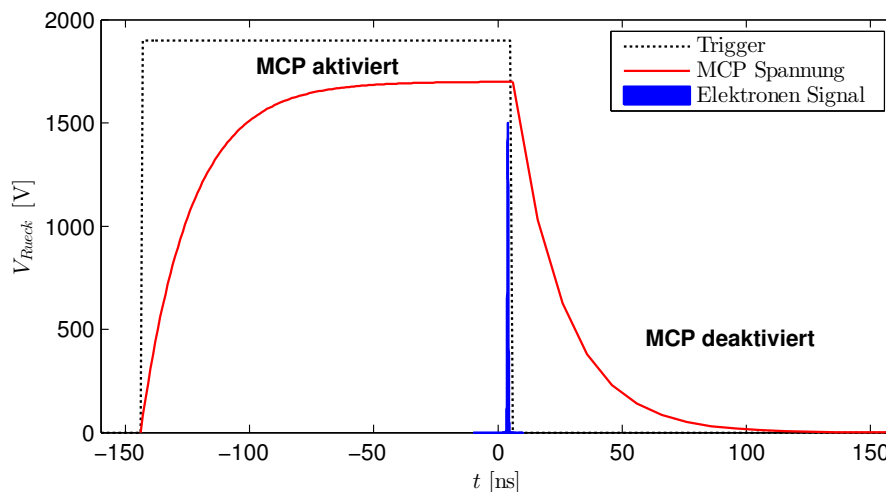


Abbildung 4.2.10: Timing und Spannungsverlauf beim Gaten der MCP. Bei anliegendem Trigger-Signal wird über einen Push-Pull Hochspannungsschalter an der MCP-Rückseite eine Spannungsversorgung zugeschaltet ( $V_{Rück} = 1700 \text{ V}$ ). Ansonsten ist der Anschluss geerdet. Die Spannungsversorgung der MCP wird 150 ns vor dem Eintreffen der Photoelektronen geladen und kurz danach wieder deaktiviert, wobei sich aufgrund der Kapazität der MCP der dargestellte Spannungsverlauf ergibt.

Bei einer Repellerspannung von  $-10\text{ kV}$  erreichen die Photoelektronen den Detektor ca.  $4\text{ ns}$  nach der Wechselwirkung mit dem Laserpuls. Die zeitliche Varianz ist sehr schmal, jedoch muss aufgrund der Ladezeit des Detektors die MCP schon etwa  $50\text{ ns}$  bis  $200\text{ ns}$  vor dem Eintreffen der Photoelektronen geladen werden. Der Spannungsanstieg bzw. -abfall hängt jeweils von der Kapazität  $C$  der MCP sowie dem Widerstand  $R$  ab ( $V_{Rück} \propto \exp[-t \cdot (R \cdot C)^{-1}]$ ). Bei einer aktiven Schaltzeit von  $150\text{ ns}$  und einer Repetitionsrate von  $1\text{ kHz}$  ist der Detektor also nur während  $0.015\%$  der Messzeit (Belichtungszeit der Kamera) aktiv, wodurch der statistische Hintergrund um etwa den Faktor  $6500$  reduziert wird. Der Effekt des Gaten auf das Hintergrundsignal wird in Abbildung 4.2.11 anhand eines schwachen, über  $200$  Aufnahmen (je  $0.2\text{ s}$  Belichtungszeit) akkumulierten Photoelektronensignal, demonstriert. Ohne Gaten sind in (a) neben den Ereignissen der Photoelektronen im mittleren Bildbereich (schwarze Punkte) auch eine Reihe von Hintergrundereignissen sichtbar, die über den gesamten Detektor verteilt sind. Diese werden durch das Gaten des Detektors praktisch vollständig unterdrückt (b). Verschiebt man das Triggersignal für das Gating um nur  $20\text{ ns}$  bis  $30\text{ ns}$  hin zu früheren Zeiten, wird die MCP zu früh deaktiviert und auch die Photoelektronen werden nicht mehr erfasst (c). Eine Zählung der Hintergrundereignisse einer Langzeitmessung bei einer Schaltzeit von  $150\text{ ns}$  resultiert in einem Hintergrundsignal von  $0.001$  Ereignissen pro Sekunde. Dies ist gegenüber einem Photoelektronensignal von  $1\text{--}50$  Ereignissen pro Sekunde vernachlässigbar.

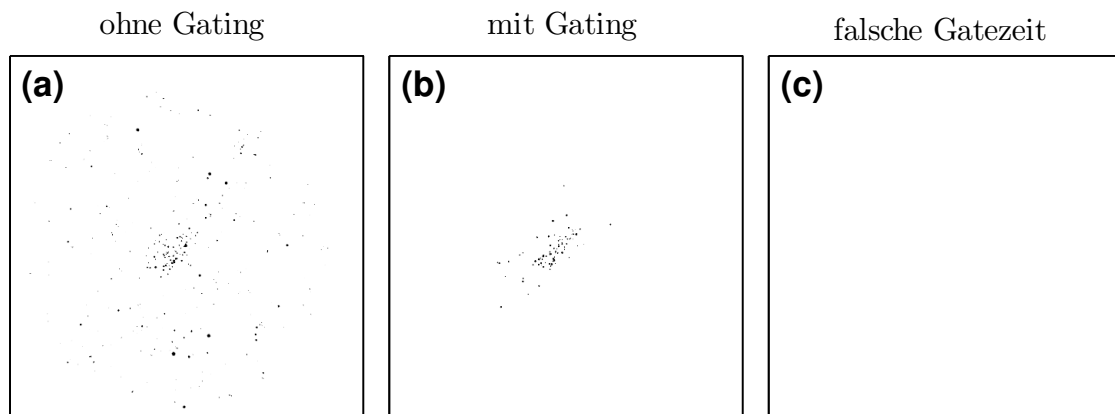


Abbildung 4.2.11: Darstellung eines über  $20\text{ s}$  akkumulierten Photoelektronensignal (schwarze Punkte) ohne Gating (a), und mit Gating (b). Durch das kurze Aktivieren des Detektors zur Ankunftszeit der Photoelektronen können Elektronen aus anderen Quellen diskriminiert werden (b). Wird der Detektor zu früh deaktiviert, werden auch keine Photoelektronen gemessen (c). Durch eine Langzeitmessung mit den Einstellungen von (c) kann das zeitlich statistische Hintergrundsignal charakterisiert werden.

### 4.3 Datenaufbereitung und Analyse

Nach der Aufnahme der Messdaten müssen diese zur weiteren Verwendung aufbereitet werden. Dies umfasst insbesondere das Zuschneiden des Bildausschnittes auf die Detektorgröße, das Zuordnen von Energie- und Impulsachsen, die Berücksichtigung der Kameraausrichtung und optionale Symmetrisierungsoperationen. Dazu wurde eine Funktion programmiert, die alle nötigen Schritte automatisch durchführt.



Dabei wird zunächst die Position des Nullpunkts  $p_x = p_z = 0$  a.u. auf der Aufnahme festgelegt. Dies kann auf manuellem Weg geschehen oder durch eine von verschiedenen Fitvarianten (Maximum, Schwerpunkt, Gauß-Fit). Danach wird die Aufnahme auf einen quadratischen Ausschnitt beschnitten, wobei sich der Nullpunkt im Zentrum befindet. An dieser Stelle besteht die Option die Aufnahme zu rotieren, um Abweichungen der Kameraausrichtung an die Laborkoordinaten anzupassen. Die Aufnahme kann auch durch Spiegelung an der horizontalen oder/und vertikalen Achse symmetrisiert werden. Abschließend werden den Bildachsen unter Verwendung von Gleichung 4.2.2 Impulsachsen zugeordnet. Für diese Zuordnung muss einmalig ein Umrechnungsfaktor [ $\text{mm Pixel}^{-1}$ ] bestimmt werden, indem der bekannte Durchmesser der aktiven Fläche der MCP in Bezug zum Durchmesser in der Abbildung gesetzt wird. Die Ausgabe der Funktion repräsentiert die Photoelektronenimpulsverteilung  $W(p_x, p_z)$ .

### Phase-der-Phase-Analyse

Durch die Kombination von Zwei-Farben-Feldern mit der VMI-Spektroskopie kann für jede relative Phase  $\varphi_{rel}$  die Photoelektronenimpulsverteilung  $W(p_x, p_z)$  erfasst werden. Für jede Position auf dem Detektor wird also das Signal  $S(p_x, p_z, \varphi_{rel})$  erfasst. Dieser dreidimensionale Datensatz wird analysiert, indem die Phase-der-Phase-Methode [1] auf das Signal angewendet wird. Bei dieser Methode wird eine Fourieranalyse des phasenabhängigen Signals  $S(p_x, p_z, \varphi_{rel})$  für jede mögliche diskrete  $p_x$ - $p_z$ -Kombination durchgeführt. Dabei wird das Signal als Summe mehrerer Harmonischer ausgedrückt, also

$$S(p_x, p_z, \varphi_{rel}) = \sum_n \Lambda_n(p_x, p_z) \cos(2\pi \cdot \nu_n \varphi_{rel} + \phi_n(p_x, p_z)), \quad (4.3.1)$$

wobei  $\Lambda_n$  die Amplitude,  $\phi_n$  die Phase (der Phasenabhängigkeit) und  $\nu_n = n/2\pi$  die Frequenz der  $n$ -ten Harmonischen des oszillierenden Signals ist. Die Frequenz der ersten Harmonischen  $\nu_1 = \frac{1}{2\pi}$  entspricht dabei einer Oszillation des Elektronensignals, die der relativen Phasen  $\varphi_{rel}$  mit gleicher Frequenz folgt. Es ist naheliegend, dass die erste Harmonische in den meisten Fällen ausreicht, um die Phasenabhängigkeit des Signals  $S(p_x, p_z, \varphi_{rel})$  hinreichend zu beschreiben, wie in Abbildung 4.3.1 demonstriert wird.

Um die Gültigkeit dieser Annahme in den verschiedenen Bereichen der Photoelektronenimpulsverteilung zu überprüfen, kann entweder die Amplitude der einzelnen Harmonischen  $\Lambda_n(p_x, p_z)$  oder der  $R^2$ -Parameter eines Kosinus-Fit betrachtet werden. Wenn  $\Lambda_1(p_x, p_z) \gg \Lambda_{n>1}(p_x, p_z)$  bzw.  $R^2(p_x, p_z) \approx 1$  ist die Annahme gut erfüllt und die Phasenabhängigkeit kann über die zwei Parameter  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  und  $\phi_1(p_x, p_z)$  dargestellt werden. Die Darstellung von  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  zeigt die impulsabhängige Variation der Amplitude und  $\phi_1(p_x, p_z)$  zeigt die Phase der Oszillation, welche angibt, bei welcher relativen Phase  $\varphi_{rel}^{max} = -\phi_1$  sich das Signal  $S(p_x, p_z, \varphi_{rel}^{max})$  für den jeweiligen Impuls maximiert. Diese Phase-der-Phase  $\phi$  wird in Kapitel 5 und 6 genutzt, um Informationen über die zeitliche Dynamik verschiedener Bereiche der Photoelektronenimpulsverteilung zu erlangen.

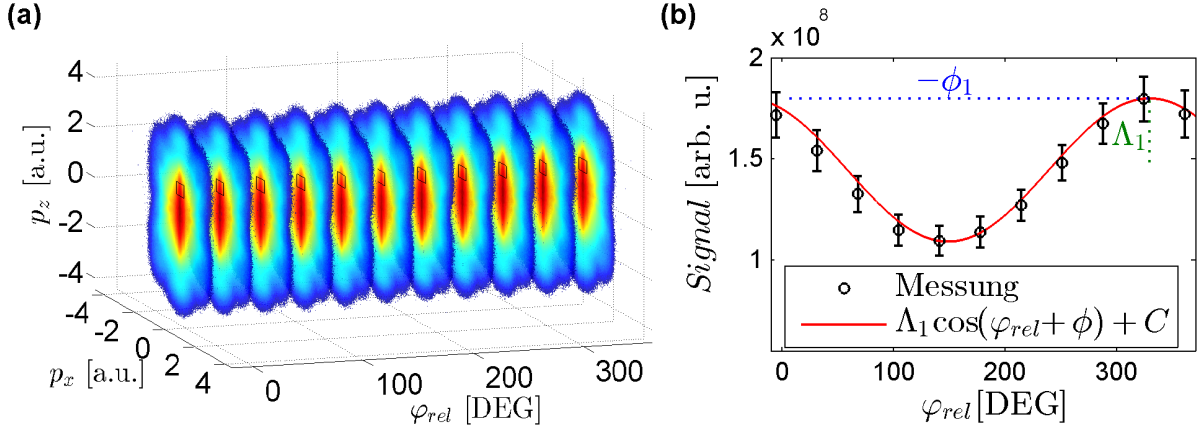


Abbildung 4.3.1: (a) Logarithmische Darstellung der phasenabhängigen Photoelektronenimpulsverteilung von Xenon in einem parallelen Zwei-Farben-Feld (Details zur Messung in Kap. 6). Das von der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  abhängige Signal  $S(p_x, p_z, \varphi_{rel})$  wird über den eingezeichneten quadratischen Bereich gemittelt und ist in (b) mit der Standardabweichung dargestellt. Die aus einer Fourieranalyse gewonnene 1. Harmonische (rote Linie) gibt den phasenabhängigen Verlauf des Signals gut wieder. Die Konstante  $C$  entspricht dabei der 0. Harmonischen des Signals.

## Abel-Inversion

Falls für die dreidimensionale Verteilung  $W(p_x, p_y, p_z)$  Zylindersymmetrie vorliegt, wie es bei linear polarisierten Laserfeldern der Fall ist, kann aus der Projektion  $W(p_x, p_z)$  mittels inverser Abel-Transformation ein Schnitt  $W(p_x, p_y = 0, p_z)$  durch die dreidimensionale Verteilung rekonstruiert werden:

$$W(p_x, p_z) = \int W(p_x, p_y, p_z) dp_y \xrightarrow{\text{inverse Abel-Transf.}} W(p_x, p_y = 0, p_z) \quad (4.3.2)$$

Dazu muss die rotationssymmetrische Achse der Verteilung (in diesem Fall die  $y$ -Achse) parallel zur Detektorachse ausgerichtet sein. In den letzten Jahren wurden im Feld der abbildenden Photoelektronenspektroskopie verschiedene Prozeduren entwickelt, um die Inversion durchzuführen (BASEX, Onion Peeling, Fourier-Hankel Methode etc. [121–124]). Bei der vorliegenden Dynamik der Photoelektronenspektren ist die iterative Prozedur von Marc J. J. Vrakking [123] vorzuziehen. Diese hat den Vorteil, auch bei „schwierigen“ Spektren mit niedrigen Zählraten oder scharfen Features in der Winkelverteilung weitestgehend artefaktfreie Inversionen zu berechnen. Die Inversion ist am Beispiel einer aus drei isotropischen Sphären bestehenden Verteilung in Abbildung 4.3.2 dargestellt. Bereits in der Projektion (Abb. 4.3.2b) ist der Radius der Sphären deutlich sichtbar, da sich durch die Projektion das meiste Signal der Verteilungen in diesem Bereich akkumuliert. Durch Anwenden der iterativen Prozedur von Marc J. J. Vrakking wird ein Schnitt durch die Verteilung  $W(p_x, p_y = 0, p_z)$  (c) rekonstruiert. Aufgrund der Rotationssymmetrie sind in dem Schnitt alle Informationen der dreidimensionalen Verteilung  $W(p_x, p_y, p_z)$  enthalten.

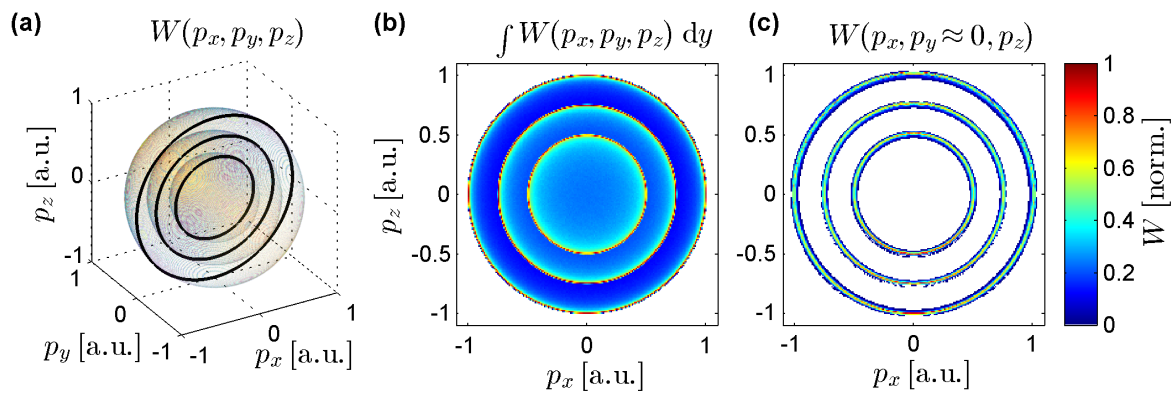


Abbildung 4.3.2: (a) Verteilung  $W(p_x, p_y, p_z)$  dreier isotropischer Sphären, wobei die zum Betrachter gerichteten Halbsphären transparenter dargestellt sind. (b) Vom VMI-Spektrometer erfassbare Projektion  $\int W(p_x, p_y, p_z) dp_y$  der Verteilung. Durch inverse Abel-Transformation kann aus der Projektion in (b) der Schnitt  $W(p_x, p_y = 0, p_z)$  durch die Verteilung gewonnen werden (c). Die Schnittebene wird in (a) durch die eingezeichneten Kreise dargestellt.

# 5 Streudynamiken in orthogonalen Zwei-Farben-Feldern

In diesem Kapitel werden die in [71] veröffentlichten Ergebnisse vorgestellt, bei denen mit einem VMI-Spektrometer die Phasenabhängigkeit der Photoelektronenimpulsspektren von Neon und Xenon in orthogonalen Zwei-Farben-Feldern untersucht wird. Dabei wird eine ungewöhnliche Geometrie für die Ausrichtung der Polarisationsrichtungen verwendet, bei der die Polarisation des (schwachen) auslenkenden Laserfeldes parallel, und die des (starken) ionisierenden Laserfeldes senkrecht zur Detektoroberfläche des VMI-Spektrometers ausgerichtet ist.

Diese Geometrie wurde aus zwei Gründen verwendet: Zum einen können Veränderungen, die durch das auslenkende Feld verursacht werden, direkt als Positionsänderung der Verteilung auf dem Detektor abgebildet werden, wobei jedoch die Information über die Impulsverteilung parallel zum ionisierenden Feld verloren geht. Zum anderen können gestreute Elektronen mit höherer Gesamtenergie detektiert werden als mit der üblichen Geometrie möglich wäre, bei der das ionisierende Laserfeld parallel zur Detektoroberfläche polarisiert ist. Der Grund dafür ist, dass die Elektronendetektion auf eine maximale Energie parallel zur Detektoroberfläche limitiert ist und die Maximalenergie von Elektronen, die senkrecht zum ionisierenden Feld emittiert werden ( $p_{\perp}^2/2 = 3.17U_p$ ), um etwa den Faktor drei niedriger ist als die Maximalenergie von Elektronen, die parallel zum ionisierenden Feld emittiert werden ( $p_{\parallel}^2/2 = 10U_p$ ). Dies ist nützlich, da bei den nun vorgestellten Experimenten noch ein VMI-Spektrometer [125] mit niedriger Energie Reichweite von  $\mathcal{E}_{\parallel} = 80 \text{ eV}$  verwendet wurde (siehe Abschnitt 4.2).

Im folgenden werden Photoelektronenimpulsspektren von Neon und Xenon präsentiert, die mit der beschriebenen Feldgeometrie aufgenommen wurden. Außerdem wird untersucht, wie sich diese für direkte und gestreute Elektronen als Funktion der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  verhalten. Die Ergebnisse der Messung werden dabei mit Simulationen des erweiterten dreidimensionalen semiklassischen Modells (siehe Kapitel 3), sowie mit der dreidimensionalen Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung in Einzelelektronennäherung verglichen. Durch Auswertung der simulierten und gemessenen Ergebnisse mit der Phase-der-Phase-Analyse [1] wird ein deutlicher Phasensprung zwischen direkten und gestreuten Elektronen sichtbar und Kontrolle über die Auslenkung demonstriert. Dabei werden die Ergebnisse für Neon mit beiden Simulationen sehr gut reproduziert. Für Xenon erreicht man ebenfalls eine gute Übereinstimmung, es sind jedoch Abweichungen im Zentrum der Verteilung beobachtbar.

## 5.1 Experimenteller Aufbau

Für die experimentelle Untersuchung der Starkfeld-Photoionisation in orthogonalen Zwei-Farben-Feldern wird der FEMTOPOWER-Ausgang des in Abschnitt 4.1 beschriebenen Titan-Saphir

Lasersystems ( $\lambda_0 = 798 \text{ nm}$ ) in einem kollinearen Interferometer mit seiner zweiten Harmonischen überlagert und in die Interaktionszone eines VMI-Spektrometers fokussiert (siehe Abb. 4.1.1 und Abb. 5.1.1(a)). Das zur Erzeugung des orthogonalen Zwei-Farben-Feldes verwendete kollineare Interferometer (Abb. 4.1.4 (a)) besteht aus einem  $200 \mu\text{m}$  dicken  $\beta - \text{BaB}_2\text{O}_4$  (BBO)-Kristall, einem  $3000 \mu\text{m}$  dicken Kalzit-Kristall und einem Paar Quarzglaskeilen. In Abhängigkeit der eingehenden Pulsenergie werden durch den BBO-Kristall bis zu 12 % der Pulsenergie aus dem Hauptlaserpuls (mit Frequenz  $\omega$ ) zu einem orthogonal polarisierten Puls mit der doppelten Frequenz ( $2\omega$ ) konvertiert. Die eingehende Pulsenergie kann durch Variation der Reflexion (durch Variation der Polarisationsrichtung) an einen Dünnschicht-Polarisator variiert werden. Durch die Rückfokussierung mit einem sphärischen Spiegel (Brennweite  $75 \text{ mm}$ ) werden im Fokuspunkt in der Interaktionszone des VMI-Spektrometers Spitzenintensitäten bis zu  $2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^{-2}$  erreicht. Die zeitliche Überlagerung zwischen beiden Feldern wird optimiert, indem durch das Verschieben der Quarzglaskeile der totale Photoelektronenertrag maximiert wird.

Als VMI-Spektrometer wurde bei diesen Messungen das von Mathias Kübel entworfene Spektrometer [125] mit einer Energereichweite von  $\mathcal{E}_{\parallel} = 80 \text{ eV}$  (Energie parallel zur Detektoroberfläche) verwendet. Das VMI-Spektrometer projiziert die dreidimensionale Photoelektronenimpulsverteilung auf einen Phosphorschirm, der mit einer CCD-Kamera (pco1300) observiert wird. Da diese Kamera nur einen Dynamikumfang von 2667:1 hat, werden während der Messung für jede relative Phase  $\varphi_{rel}$  mehrere Aufnahmen unterschiedlicher Belichtungszeit (3 s, 10 s, 30 s, 80 s, 240 s und 720 s) aufgenommen und zu einer Aufnahme mit hohem Dynamikumfang zusammengefügt (Details siehe Abschnitt 4.2 unter Datenerfassung). Dieser Ansatz erlaubt es, neben den Bereichen der Photoelektronenimpulsverteilung mit hohem Elektronenertrag (d. h. Bereiche der direkten Elektronen) auch Bereiche mit einem um vier bis fünf Größenordnungen geringeren Elektronenertrag zu observieren (z. B. Bereiche, in welchen nur gestreute Elektronen auftreten). Durch die Verwendung von orthogonalen Zwei-Farben-Feldern ergibt sich im Vergleich zu üblichen VMI-Messungen mit linear polarisierten Feldern das Problem, dass die Rotationssymmetrie gebrochen wird. Daher ist eine Rekonstruktion der dreidimensionalen Photoelektronenimpulsverteilung durch Anwenden der inversen Abel-Transformation (siehe Abschnitt 4.3) auf die gemessene Projektion der Verteilung nicht möglich. Es besteht zwar die Möglichkeit, die dreidimensionale Verteilung durch Verwendung von tomographischen Methoden [118] zu rekonstruieren, jedoch erfordern dies, Projektionen der Verteilung aus mehreren Winkeln aufzunehmen. Dies ist jedoch für orthogonale Zwei-Farben-Felder nur schwer zu realisieren, da sowohl das kollineare Interferometer als auch die eingehende Polarisationsrichtung rotiert werden müssen. Zudem müsste für jede relative Phase  $\varphi_{rel}$  eine Messung aus etwa zehn Blickwinkeln durchgeführt werden, wodurch die ohnehin schon lange Messzeit von etwa 18 Minuten pro relativer Phase auf 180 Minuten erhöht werden würde. Letzteres ist besonders von Nachteil, wenn auch Bereiche mit niedrigem Photoelektronensignal untersucht werden sollen.

Bei den hier vorgestellten Experimenten wird eine ungewöhnliche Geometrie für die Ausrichtungen der Polarisierungen verwendet (s. Abb. 5.1.1 (a)) und die auf den Detektor projizierten Photoelektronenverteilungen  $W(p_x, p_y, p_z)$  direkt mit theoretischen Ergebnissen verglichen. Zunächst wird der Unterschied zwischen üblichen VMI-Messungen für linear polarisierte Felder und den mit der vorgestellten Geometrie observierten Projektionen illustriert. In (b) wird ei-

ne typische Projektion einer Photoelektronenimpulsverteilung  $W(p_x, p_y, p_z)$  in einem linearen, parallel zur Detektoroberfläche polarisierten Laserfeld gezeigt. Durch Anwenden einer inversen Abel-Transformation (iterative Methode [123]) erhält man einen Schnitt  $W(p_x, p_y, p_z = 0)$  durch die Photoelektronenimpulsverteilung, der in (d) dargestellt ist. Wird die Geometrie so geändert, dass die Polarisationsrichtung senkrecht zur Ebene des Detektors ausgerichtet ist, wird die in Abbildung 5.1.1 gezeigte Projektion gemessen. Die gestrichelten Ringe in (c) entsprechen dabei den gestrichelten Linien in (b) und (d) und markieren zwei verschiedene Impulse senkrecht zur Polarisationsrichtung. Wie für ein linear polarisiertes Ein-Farben-Feld zu erwarten ist, ist die in (c) gemessene Projektion rotationssymmetrisch. Für ein orthogonales Zwei-Farben-Feld, bei dem die Polarisation des  $2\omega$ -Feldes parallel zur Detektoroberfläche ( $\mathbf{E}_{2\omega} \parallel \mathbf{e}_y$ ) ausgerichtet ist, werden Impulsänderungen, die durch das  $2\omega$ -Feld induziert werden, direkt auf dem Detektor abgebildet (e). Wie erwartet, wird die Aufhebung der Zylindersymmetrie beobachtet.

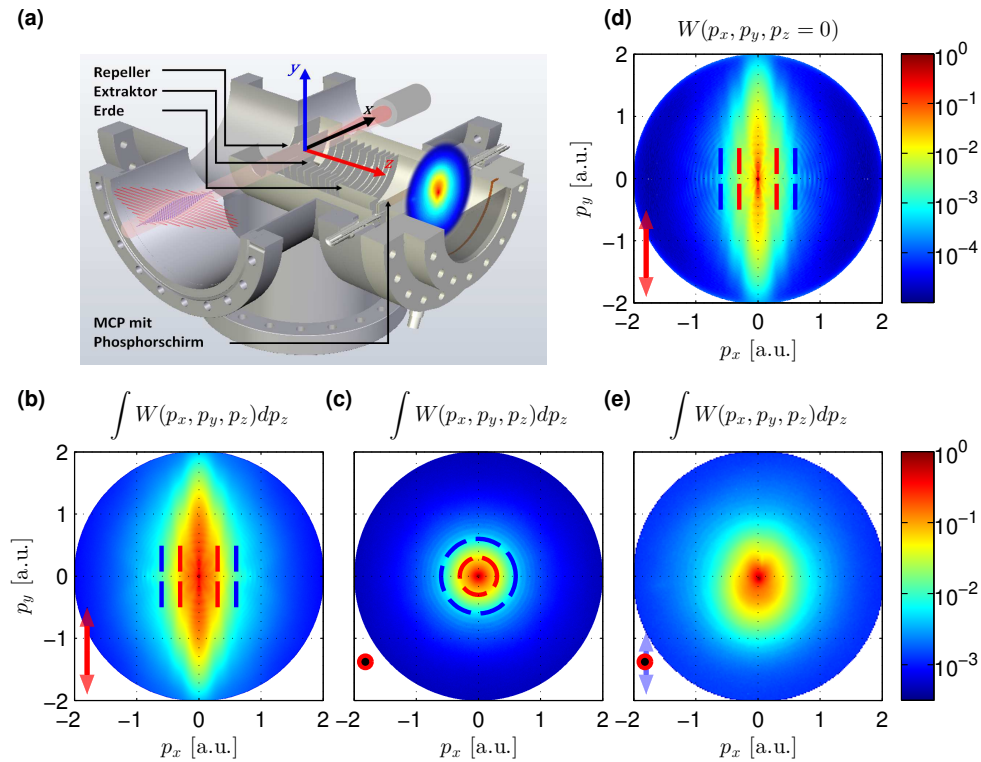


Abbildung 5.1.1: (a) Darstellung der Polarisationsrichtungen des orthogonalen Zwei-Farben-Feldes im Bezug zu den Laborkoordinaten des VMI-Spektrometers. Die linear polarisierten Komponenten  $\omega$  (rot) und  $2\omega$  (blau) sind parallel zur  $z$ - bzw.  $y$ -Achse ausgerichtet. Die Polarisationsrichtung beider Komponenten ist außerdem in allen Teilabbildungen durch kleine rote ( $\omega$ ) und blaue ( $2\omega$ ) Pfeile skizziert. (b) und (c) demonstrieren die Auswirkung der Ausrichtung der Polarisation auf die gemessene Projektion der Photoelektronenimpulsverteilung eines linear polarisierten (Ein-Farben)-Laserfeldes. Dabei ist die Polarisation in (b) parallel zur  $y$ -Achse und in (c) parallel zur  $z$ -Achse ausgerichtet. Aufgrund der Zylindersymmetrie der Photoelektronenimpulsverteilung kann aus der Projektion  $\int W(p_x, p_y, p_z) dp_z$  (b) mittels inverser Abel-Transformation der Schnitt durch die dreidimensionale Verteilung  $W(p_x, p_y, p_z = 0)$  berechnet werden (d). Die gestrichelten Linien bzw. Kreise dienen der Orientierung und markieren zwei spezifische Impulse senkrecht zur Polarisation des Laserfeldes. (e) zeigt die Veränderung der Photoelektronenimpulsverteilung im Vergleich zu (c), wenn ein schwaches senkrecht polarisiertes  $2\omega$ -Feld ( $\mathbf{E}_{2\omega} \parallel \mathbf{e}_y$ ) hinzugefügt wird. Die Zylindersymmetrie wird dabei aufgehoben.

Der Hauptteil dieses Experimentes ist die Aufnahme und Analyse der in (e) dargestellten Projektion als Funktion der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  für die Gase Neon und Xenon. Für jede Messreihe wird dabei  $\varphi_{rel}$  um  $2\pi$  variiert (Schrittweite  $2\pi/17$ ), indem mithilfe der Quarzglaskeile des kollinearen Interferometers, die Dicke des Quarzglases im Strahlengang verändert wird. Dabei werden etwa  $23.8\ \mu\text{m}$  Quarzglas benötigt, um  $\varphi_{rel}$  um  $2\pi$  zu ändern. Die Schrittweite entspricht dem Hinzufügen von  $\sim 1.4\ \mu\text{m}$  Quarzglas in den Strahlengang. Diese Werte können mit Gleichung 4.1.4 und den Werten in Tabelle 4.1 berechnet und durch die beobachtete Periodizität des phasenabhängigen Signals  $S(p_x, p_y, \varphi_{rel})$  bestätigt werden.

## 5.2 Semiklassische Simulation und Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung

Die gemessenen Photoelektronenimpulsverteilungen werden mit den simulierten Verteilungen verglichen, die mit dem in Kapitel 3 vorgestellten erweiterten dreidimensionalen semiklassischen Modell berechnet wurden. Die Streuung der zurückkehrenden Elektronen am Mutterion wird dabei in erster Born-Näherung durch eine sphärische Streuverteilung entsprechend des differentiellen Wirkungsquerschnitts der Streuung einer ebenen Welle an einem Yukawa-Potenzial  $V(r) = -Z \exp(-\mu r)/r$  modelliert. Der Abschirmparameter  $\mu$  kontrolliert dabei die Reichweite des Potenzials.

Als erste Anwendung wird das erweiterte semiklassische Modell verwendet, um die Intensität des ionisierenden Laserfeldes ( $I_\omega$ ) zu kalibrieren. Dazu wird der Kalzit-Kristall des kollinearen Interferometers um  $90^\circ$  verdreht, sodass sich die Komponenten des Zwei-Farben-Feldes zeitlich nicht mehr überschneiden. Die  $2\omega$ -Komponente trifft nun nach dem ionisierenden Feld ein und hat daher keinen Einfluss mehr auf die Photoelektronenimpulsverteilung. Zur Überprüfung wurde die  $2\omega$ -Komponente zusätzlich mit dichroitischen Spiegeln blockiert. Dabei konnten keine weiteren Veränderungen der Verteilung festgestellt werden.

Die daraus resultierende (Ein-Farben-)Impulsverteilung der Neon-Messung wird in Abbildung 5.2.1 mit den Ergebnissen der erweiterten semiklassischen Simulation verglichen. Dabei wird die gemessene Verteilung  $W(p_y) = \int \int W(p_x, p_y, p_z) dp_x dp_z$  in (a) als blaue Linie, und die gemessene Verteilung  $W(p_x, p_y) = \int W(p_x, p_y, p_z) dp_z$  in der linken Bildhälfte von (b) dargestellt.

Die farbigen Kreise markieren die mit der semiklassischen Simulation (grüne Linie in (a), rechte Bildhälfte von (b) sowie (c)) berechneten Begrenzungen der Streuverteilungen von Elektronen, die zur Rückkehr erster Ordnung (rot), zweiter Ordnung (blau) oder dritter Ordnung gestreut werden. Der Radius ist dabei durch den der jeweiligen maximalen Rückkehrenergie  $3.17 U_p$ ,  $1.54 U_p$  und  $2.40 U_p$  entsprechenden Impuls der Elektronen gegeben. Der  $2 U_p$ -Grenzwert der  $\omega$ -Komponente ist in (c) als schwarzer Balken markiert. Die gemessene Begrenzung der Verteilung  $W(p_y)$  bei etwa  $|p_y| \approx 1.9$  a.u. (blaue Linie in (a)) entspricht dem Radius des eingezeichneten roten  $3.17 U_p$ -Kreises, wonach sich mit Gleichung 2.1.23 die Intensität  $I_\omega = 2.5 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  berechnen lässt. Die mit dieser Intensität simulierte Verteilung (grüne Linie in (a) und rechte Bildhälfte von (b)) gibt die Messung sehr gut wieder. Der Vergleich zwischen (b) und (c) zeigt ebenfalls den Vorteil der Messgeometrie, da der  $3.17 U_p$ -Grenzwert der Verteilung  $W(p_x, p_y)$  (b) um etwa den Faktor drei niedriger liegt als der  $10 U_p$ -Grenzwert der  $W(p_x, p_z)$  Verteilung in

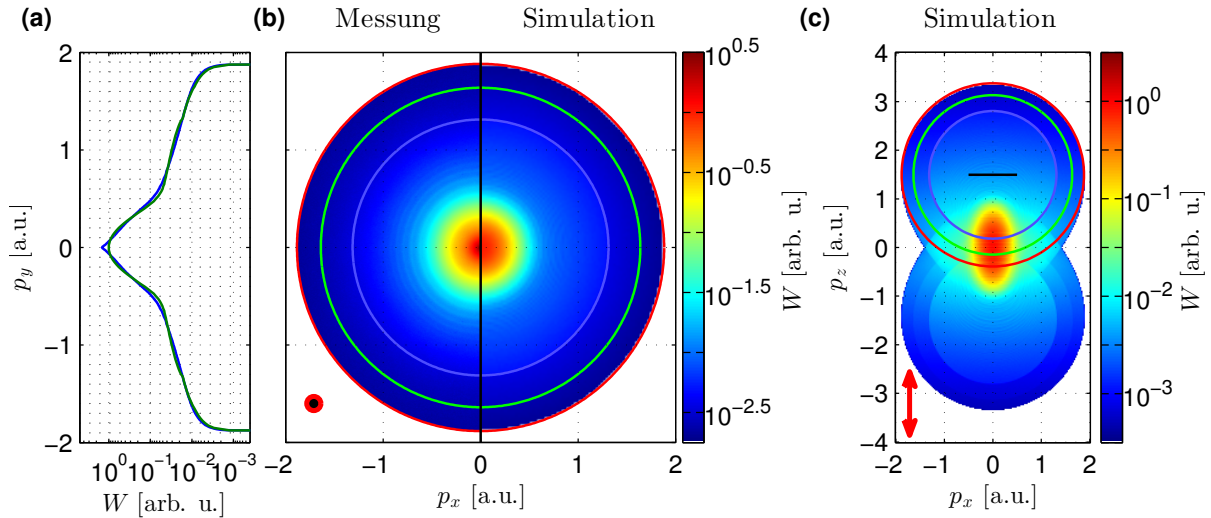


Abbildung 5.2.1: Berechnete Photoelektronenimpulsverteilung für ein Ein-Farben-Feld ( $I_\omega = 2.5 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $I_{2\omega} = 0$ ) im Vergleich zu einer Messung im orthogonalen Zwei-Farben-Feld (Neon) ohne zeitliche Überschneidung der Feldkomponenten. (a) zeigt die gemessene (blau) und berechnete (grün) Verteilung  $W(p_y)$ . (b) Vergleich der gemessenen und berechneten Impulsverteilung  $W(p_x, p_y)$ . Die Kreise markieren die Begrenzung der Streuimpulse erster Ordnung (roter Kreis), zweiter Ordnung (blauer Kreis) und dritter Ordnung (grüner Kreis). (c) zeigt die Impulsverteilung  $W(p_x, p_z)$ . Die Kreise sind um einen Impuls verschoben, der dem  $2U_p$ -Grenzwert des  $\omega$ -Feldes entspricht.

(c). Dies erlaubt es, auch mit einem kleineren Detektor alle hochenergetischen Elektronen zu erfassen.

Für den Fall eines Zwei-Farben-Feldes wird die Intensität der  $2\omega$ -Komponente an die gemessene Oszillationsamplitude der Photoelektronenimpulsverteilung in  $y$ -Richtung angepasst (siehe auch Abb. 5.3.2). Diese phasenabhängige Oszillation wird auch verwendet, um die relative Phase zwischen beiden Feldern zu kalibrieren, indem die Messung mit den simulierten Spektren direkter Elektronen verglichen werden. Der Abschirmparameter  $\mu$  des Yukawa-Potenzials wird so optimiert, dass die beste Übereinstimmung zwischen Messung und semiklassischer Simulation erreicht wird. Für Neon ergibt sich  $I_\omega = 2.5 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $I_{2\omega} = 1 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$  und  $\mu = 2.1$ , für Xenon  $I_\omega = 4 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $I_{2\omega} = 6 \times 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$  und  $\mu = 0.1$ .

Trotz der scheinbar guten Übereinstimmung beim Vergleich der Impulsspektren führen die ermittelten Werte bei Neon nicht zur besten Übereinstimmung, wenn die Phasenabhängigkeit der Impulsspektren mit der Phase-der-Phase-Analyse betrachtet wird. Hier führen ein kleineres  $\mu = 0.1$  und höhere Intensitäten ( $I_\omega = 8 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $I_{2\omega} = 5 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ ) zu einem besseren Ergebnis. Dies kann daran liegen, dass der angenommene  $3.17 U_p$ -Grenzwert am Rand des Detektors liegt, wo ein Abfall der Sensitivität möglich ist. Mit der durch die Phasenabhängigkeit kalibrierten Intensität würde der  $3.17 U_p$ -Grenzwert nicht mehr auf dem Detektor liegen. Das kleinere  $\mu$  nähert das Yukawa-Potenzial einem Coulomb-Potenzial an, welches für Trajektorien mit großem Stoßparameter eher zutreffen sollte.

Bei den genannten Parametern werden die Photoelektronenimpulsverteilungen in Abhängigkeit von der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  simuliert, wobei  $\varphi_{rel}$  in  $10^\circ$  Schritten zwischen  $0^\circ$  und  $360^\circ$  variiert wird.



## Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung

Die Ergebnisse des erweiterten semiklassischen Modells werden außerdem mit numerischen Lösungen der zeitabhängigen Schrödingergleichung (TDSE) verglichen, die ebenfalls in drei Dimensionen berechnet werden. Die Berechnungen der zeitabhängigen Schrödingergleichung wurden im Rahmen einer Kollaboration mit der Arbeitsgruppe von Prof. Manfred Lein von Nicolas Eicke (Leibniz Universität Hannover) durchgeführt. Die Gleichung wird in Einzelelektronennäherung mit der Split-Operator-Methode auf einem kartesischen Gitter gelöst, wobei die Geschwindigkeitseichung verwendet wird. Die Photoelektronenimpulsverteilung wird berechnet, indem die ausgehenden Teile der Wellenfunktion auf die Volkov-Zustände projiziert werden [127]. Für das Laserfeld wird eine Einhüllende  $f(t) = \sin^2(\omega t/24)$  verwendet, was einem Laserpuls mit 12 Zyklen entspricht. Die Bindung des Elektrons an den Kern wird durch ein Potenzial (in Einzelelektronennäherung)

$$V(r) = -(Z_c + a_1 e^{-a_2 r} + a_3 r \cdot e^{-a_4 r} + a_5 e^{-a_6 r}) / r \quad (5.2.1)$$

von Tong und Lin modelliert [64, 91].

Die Singularität des Tong-Lin-Potenzials bei  $r = 0$  a.u. bereitet jedoch Probleme bei der Berechnung, da durch die Singularität für eine akkurate Lösung der TDSE sehr kleine Zeitschritte, als auch eine hohe räumliche Auflösung benötigt werden. Um diesem Problem zu begegnen, wird daher das Potenzial für kleine Radien entsprechend der in [128] beschriebenen Prozedur modifiziert. Dabei wird ein kleiner Begrenzungsradius eingeführt, der so gewählt wird, dass alle Knotenpunkte der radialen Wellenfunktion innerhalb einer Kugel mit diesem Radius liegen. Das Potenzial wird dann innerhalb des Radius so modifiziert, dass die Singularität verschwindet und der  $2p$ -Zustand des neuen Potenzials außerhalb des Radius mit dem vorherigen  $2p$ -Zustand des unveränderten Potenzials übereinstimmt. Für Xenon werden durch diese Prozedur die Knotenpunkte des vorherigen  $5p$ -Zustandes entfernt, sodass dieser effektiv zu einem  $2p$ -Zustand wird, wobei das Ionisationspotenzial erhalten bleibt. Die Berechnungen wurden bei den folgenden Parametern durchgeführt. Für Xenon liegt der Begrenzungsradius bei 2 a.u., die Größe der Box bei 125 a.u. und der Gitterabstand bei 0.25 a.u. Für Neon ist der Begrenzungsradius 3 a.u., die Größe der Box 300 a.u. und der Gitterabstand 0.39 a.u. Die gesamte Propagationszeit der Rechnung ist 1500 a.u. mit Zeitschritten von 0.03 a.u.

Für Xenon wurden außerdem Berechnungen ausgehend von einem  $1s$ -Zustand eines „Soft-Core“-Potenzials  $V(r) = -1/\sqrt{r^2 + \alpha^2}$  durchgeführt, wobei  $\alpha$  so gewählt wird, dass das Ionisationspotenzial  $I_p = 0.446$  a.u. reproduziert wird.

### 5.3 Datenanalyse

Um die Phasenabhängigkeit der gemessenen und simulierten Verteilungen zu quantifizieren und zu analysieren, wird die in Abschnitt 4.3 beschriebene Phase-der-Phase-Analyse angewandt.

Die Prozedur wird anhand zweier Datenpunkte der Neon-Messung in Abbildung 5.3.1 demonstriert. Diese sind durch ein rotes und ein schwarzes  $+$  in (d)-(f) markiert. Das mit der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  oszillierende Signal  $S(\varphi_{rel})$  dieser beiden Punkte wird in (a) gezeigt. Durch Fou-

riertransformation beider Signale erhält man Amplitude  $\Lambda_n$  (b) und die Phase-der-Phase  $\phi_n$  (c) der Frequenzkomponenten  $\nu_n$ . Abbildung 5.3.1(d) zeigt, dass die Amplitude  $\Lambda_1$  der ersten Harmonischen mit Frequenz  $\nu_1$  für die meisten Elektronenimpulse dominiert. (e) und (f) zeigen Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_y)$  und Phase  $\phi_1(p_x, p_y)$  der ersten Harmonischen aller gemessenen Impulse. Die für verschiedene Impulse unterschiedliche Phasenabhängigkeit des Elektronensignals ist in (f) deutlich erkennbar.

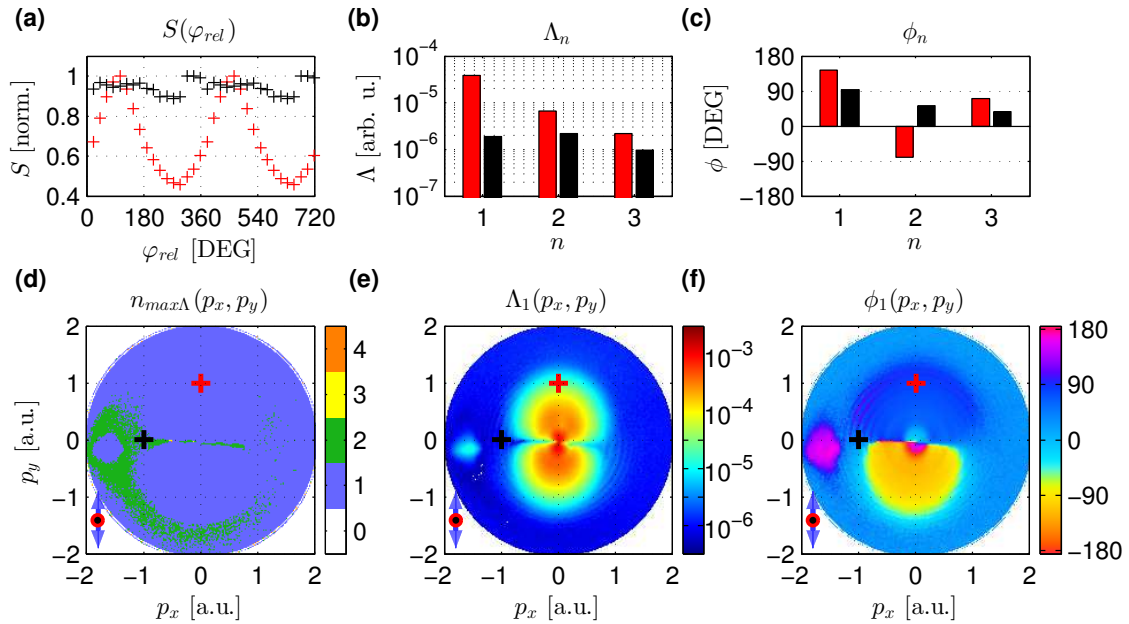


Abbildung 5.3.1: (a) Phasenabhängiges Signal  $S(\varphi_{rel})$  zweier spezifischer Impulse, die in (d) bis (f) durch rote und schwarze  $+$ -Symbole markiert sind. Die Anwendung einer Fouriertransformation liefert die Amplitude  $\Lambda_n$  (b) und die Phase  $\phi_n$  (c) der Frequenzkomponenten  $\nu_n = n/2\pi$  des Signals  $S(\varphi_{rel})$ . (d) zeigt für jeden Impuls, für welches  $n_{max\Lambda}(p_x, p_y)$  die stärkste Amplitude  $\Lambda_n(p_x, p_y)$  auftritt. Die 1. Harmonische ( $n = 1$ ) oszilliert mit derselben Frequenz  $\nu_1 = 1/2\pi$ , mit der auch die relative Phase  $\varphi_{rel}$  variiert wird. Sie dominiert in den meisten Fällen. Daher sind die Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_y)$  (e) und die Phase  $\phi_1(p_x, p_y)$  (f) bereits aussagekräftige Darstellungen der zugrundeliegenden Prozesse. Der auffällige Fleck in (d)-(f) nahe  $(p_x, p_y) = (-1.6, -0.2)$  wird durch einen Defekt auf der Detektoroberfläche verursacht und kann daher vernachlässigt werden.

Während die erste Harmonische mit der Frequenz der Phasenabhängigkeit  $\nu_1$ , für 70% der Datenpunkte dominiert, werden auch Bereiche beobachtet, in denen die zweite Harmonische mit Frequenz  $\nu_2$  dominiert. Diese treten hauptsächlich in der Region um  $p_y \approx 0$  a.u., d. h. senkrecht zum  $2\omega$ -Feld auf, da die Auslenkung der Photoelektronenimpulsverteilung in  $y$ -Richtung  $-A_y(t)$  folgt (Abbildung 5.3.2(a)). Eine Auslenkung um  $p_y \approx 0$  a.u. entspricht also einem Nulldurchgang des Vektorpotenzials  $A_y$  des  $2\omega$ -Feldes, der zweimal pro optischem Zyklus erreicht wird. Das Maximum von  $A_y$  wird jedoch nur einmal pro optischem Zyklus erreicht. Daher oszilliert das Signal für Elektronen mit einem Impuls  $|p_y| < \sqrt{2 \cdot 2U_p}$  (mit  $U_p$  des  $2\omega$ -Feldes) doppelt so schnell wie die natürliche Phasenabhängigkeit. Dies ist anhand der Beispielimpulse in Abbildung 5.3.2(b) gut zu erkennen.

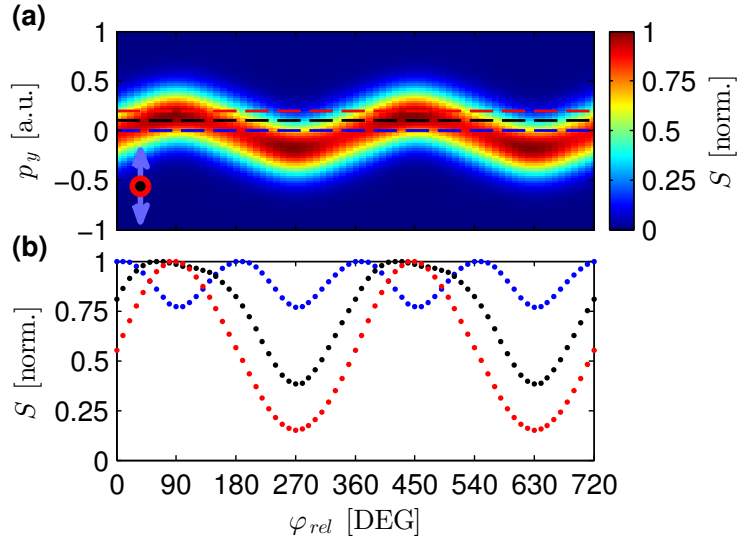


Abbildung 5.3.2: (a) Simulation der Impulsverteilung entlang der  $y$ -Achse ( $|p_x| \leq 0.1$  a.u.) als Funktion der relativen Phase  $\varphi_{rel}$ . Durch die relative Phase wird die Auslenkung der Verteilung in  $y$ -Richtung variiert. (b) Normiertes phasenabhängiges Signal  $S(p_y, \varphi_{rel})$  für verschiedene Impulse  $p_y$ . Die Impulse sind in (a) durch gestrichelte Linien markiert. Signale von Impulsen innerhalb des Auslenkungsbereichs der Verteilung ( $|p_y| \leq 0.2$  a.u.) oszillieren doppelt so schnell mit der relativen Phase wie für Impulse außerhalb des Auslenkungsbereichs (d. h. für  $|p_y|$ -Impulse größer als der  $2U_p$ -Grenzwert des  $2\omega$  Feldes).

## 5.4 Ergebnisse und Diskussion

Um die gemessenen phasenabhängigen Photoelektronenimpulsverteilungen zu beschreiben und zu interpretieren, werden die Möglichkeiten der semiklassischen Simulation genutzt, um einzelne Komponenten der Impulsverteilung (d. h. direkte und gestreute Elektronen) getrennt voneinander zu untersuchen. Bevor die Phasenabhängigkeit der Verteilungen diskutiert wird, wird zunächst auf die allgemeine Struktur der Photoelektronenimpulsverteilungen eingegangen.

### Allgemeine Struktur

Zuerst wird auf die direkten Elektronen eingegangen, d. h. Elektronen, die zum Zeitpunkt  $t_i$  ionisiert und im Laserfeld beschleunigt werden, aber an keinen Streuprozessen teilnehmen. Für diese Elektronen ist der finale Impuls in guter Näherung gleich dem mit -1 multiplizierten Vektorpotenzial zum Zeitpunkt der Ionisation, d. h.  $p_f^{dir} = -\mathbf{A}(t_i) + \mathbf{p}_\perp$ . Weiterhin maximiert sich die Ionisationswahrscheinlichkeit am Nulldurchgang des Vektorpotenzials, d. h. am Maximum des ionisierenden Feldes  $E_\omega$ . Für eine relative Phase  $\varphi_{rel} = 90^\circ$  werden in Abbildung 5.4.1(c) die Vektorpotenziale  $A_z$ ,  $A_y$  beider Komponenten ( $\omega$ ,  $2\omega$ ) und qualitativ die Ionisationswahrscheinlichkeit (graue Fläche) gezeigt. Die maximale Ionisationswahrscheinlichkeit tritt jeden Halbzyklus bei  $t = 0T$ ,  $0.5T$ , etc. auf, zum Beispiel für den durch das  $\times$  markierten Zeitpunkt. Da zu diesen Zeitpunkten  $A_z = 0$  a.u. und  $A_y < 0$  a.u. gilt, erhalten die Elektronen einen Impuls  $p_f^{dir} = -A_y(t_i)$ , sofern senkrechte Anfangsgeschwindigkeiten  $\mathbf{p}_\perp$  vernachlässigt werden. Dies verschiebt den Schwerpunkt der Photoelektronenimpulsverteilung der direkten Elektronen zu positiven Impulsen  $p_y$ , siehe linke Bildhälfte in (a) und (b) bzw. Abbildung 5.3.2(a).

Im umgekehrten Fall mit  $\varphi_{rel} = 270^\circ$  ist das Vorzeichen des  $2\omega$ -Feldes vertauscht, sodass die Photoelektronenimpulsverteilung direkter Elektronen zu negativen Impulsen  $p_y$  ausgelenkt wird (siehe rechte Bildhälfte von Abb. 5.4.1(a) und (b)). (d) zeigt die simulierte Verteilung  $W(p_y, p_z) = \int W(p_x, p_y, p_z) dp_x$  für  $\varphi_{rel} = 90^\circ$ , für die die Auslenkung der Komponenten besonders gut zu beobachten ist. Wird die Ionisationszeit  $t_i$  verändert, folgt der Schwerpunkt der Impulsverteilung dem negativen Vektorpotenzial  $-\mathbf{A}(t_i)$ , welches in (d) als weiße gestrichelte Linie dargestellt ist. Anhand der Verteilung direkter Elektronen (in etwa der rote Bereich der Verteilung) ist dies besonders gut zu erkennen, da diese auch die Krümmung der weißen gestrichelten Linie aufweist. Die Simulation und die Struktur der Verteilung direkter Elektronen wird in Abschnitt 3.4 und Abbildung 3.4.1 ausführlich beschrieben.

Die Auswirkungen der relativen Phase auf die Photoelektronenimpulsverteilung gestreuter Elektronen ist etwas komplexer. Nach der Ionisation werden diese vom Mutterion fort und anschließend wieder zurück beschleunigt. Dabei werden sie bei der Rückkehr am Mutterion gestreut. Die Streuung wird, wie bereits in Abschnitt 3.3 ausgeführt, durch den differentiellen Wirkungsquerschnitt und die Elektronentrajektorie beschrieben, wobei die Elektronentrajektorie durch die Ionisationszeit  $t_i$  und die relative Phase  $\varphi_{rel}$  beeinflusst wird. Die gepunkteten Kreise in Abbildung 5.4.1(d) zeigen die Kontur der durch elastische Streuung entstehenden sphärischen Streuverteilungen der ersten Ordnung (Streuung bei erster Rückkehr) für verschiedene Rückkehrzeiten  $t_r$ . Der Radius der sphärischen Streuverteilungen jeder zurückkehrenden Trajektorie entspricht dabei dem Rückkehrimpuls  $\mathbf{p}_r$ . Nach  $\mathbf{p}_f^{streu} = -\mathbf{A}(t_r) + \mathbf{p}_{streu}(\mathbf{p}_r, \varphi_{streu}, \theta_{streu})$  (Gl. 3.3.5) folgen die Mittelpunkte der Verteilung ebenfalls der weißen gestrichelten, durch  $-\mathbf{A}(t_r)$  definierten Linie. Im Gegensatz zur Verteilung der direkten Elektronen, bei der die Auslenkung von der Ionisationszeit  $t_i$  abhängt, ist bei der Verteilung gestreuter Elektronen die Rückkehrzeit  $t_r$ , zu der die Streuung stattfindet, entscheidend. Für einige Ionisationszeiten  $t_i$  sind auch mehrere Streueignisse möglich (siehe Abb. 3.5.2). Für Streuungen höherer Ordnungen werden in (b) und (d) die Begrenzungen der Streuverteilung erster, zweiter und dritter Ordnung (roter, blauer und grüner Kreis), die zur Rückkehrzeit  $t_r = 0.25T$  gestreut werden, gezeigt. Der Radius unterscheidet sich aufgrund der unterschiedlichen Rückkehrimpulse.

Allgemein ausgedrückt führt eine Veränderung der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  dazu, dass die Ionisationszeit  $t_i$  bzw. Rückkehrzeit  $t_r$ , bei der eine maximale Auslenkung durch das  $2\omega$ -Feld auftritt, variiert wird. Dies kann durch die zuvor erläuterte Phase-der-Phase-Analyse (Abschnitt 4.3) quantifiziert und visualisiert werden. Zudem erlaubt die semiklassische Simulation die einzelnen Beiträge zur gesamten Photoelektronenimpulsverteilung zu separieren und individuell zu untersuchen. Diese Möglichkeit wird nun genutzt, um die in Abbildung 5.4.2 gezeigte Phase  $\phi_1(p_x, p_y)$  (a)-(e) und Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_y)$  (f)-(j) der simulierten Photoelektronenimpulsverteilung ( $I_\omega = 8 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $I_{2\omega} = 5 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $\mu = 0.1$ ) direkter Elektronen und gestreuter Elektronen darzustellen. Elektronen, die zu der ersten Rückkehr streuen, weisen in ihrer Phase die meisten Strukturen auf. Ursache dafür ist der, im Vergleich zu Rückkehrereignissen höherer Ordnungen, größere Parameterbereich, der für Rückkehrzeit und die Rückkehrerenergie möglich ist (siehe Abb. 3.5.2). Die gestrichelten Kreise kennzeichnen für jeden Prozess die Begrenzung der Photoelektronenimpulsverteilung bei maximaler Auslenkung in  $y$ -Richtung. Für direkte Elektronen ist der maximale Impuls in  $y$ -Richtung  $\max(|p_y|) = 1.86 \text{ a.u.}$ ; für Streuungen erster, zweiter und dritter Ordnung findet sich entsprechend  $\max(|p_y|) = 3.65 \text{ a.u.}$ ,  $2.65 \text{ a.u.}$  und

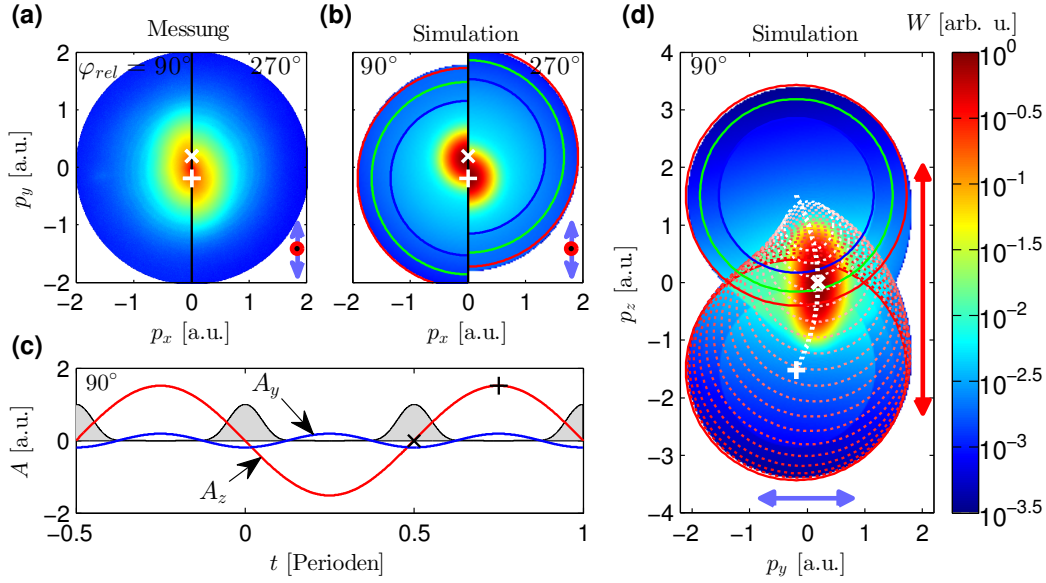


Abbildung 5.4.1: Abbildung (a) und (b) zeigen die durch ein schwaches  $2\omega$ -Feld ( $I_{2\omega} = 1.0 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ ) verursachte Auslenkung der experimentellen und simulierten Projektion  $\int W(p_x, p_y, p_z) dp_z$  der Elektronenimpulsverteilung von Neon. Das ionisierende  $\omega$ -Feld ( $I_\omega = 2.5 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ) ist dabei senkrecht zur Detektoroberfläche polarisiert. Animierte Abbildungen des vollständigen Datensatzes für die relativen Phasen  $\varphi_{rel} = 0^\circ$  bis  $360^\circ$  stehen im Internet unter <http://stacks.iop.org/JPB/51/015001/mmedia> zur Verfügung. Diese zeigen deutlich, wie zwei Anteile der Photoelektronenimpulsverteilung mit ungefähr entgegengesetzter Phasenabhängigkeit in  $y$ -Richtung ausgelenkt werden. Dies kann mit dem semiklassischen Modell erklärt werden. (c) zeigt die zeitabhängige qualitative Ionisationsrate (graue Fläche) zusammen mit den Komponenten des Vektorpotenzials  $A_z$  und  $A_y$  des  $\omega$ - bzw.  $2\omega$ -Feldes. Das  $+$ - und  $\times$ -Symbol markiert  $A_z(t)$  für die Zeitpunkte  $t$ , zu denen  $A_y(t)$  maximiert bzw. minimiert wird. Für  $\varphi_{rel} = 90^\circ$  tritt eine nennenswerte Ionisationsrate nur in Bereichen mit negativen  $A_y$  auf (z.B. nahe der  $\times$ -Markierung). Dementsprechend werden direkte Elektronen, die zu diesem Zeitpunkt emittiert werden, in die positive Richtung ausgelenkt. Die Auslenkung um  $-A_y(t_i = 0.5T)$  ist in der linken Bildhälfte von (a) und (b) durch das weiße  $\times$ -Symbol markiert. Das  $+$ -Symbol hingegen markiert den Zeitpunkt  $t_r$  der Rückstreuung von Elektronen, die zu einem Zeitpunkt  $t = t_i$  kurz nach  $t = 0T$  (d. h. mit hoher Ionisationsrate) emittiert werden. Da nahe des  $+$ -Symbols  $A_y(t_r) > 0$  gilt, wird die Verteilung gestreuter Elektronen in negativer  $y$ -Richtung ausgelenkt. In Abbildungen (b) und (d) ist der maximale Radius der Streuverteilungen der ersten, zweiten und dritten Ordnung in rot, blau und grün dargestellt. Das Zentrum der Kreise wird durch weiße  $+$ -Symbole markiert. (d) zeigt die simulierte Projektion der Elektronenimpulsverteilung  $\int W(p_x, p_y, p_z) dp_x$ . Elektronen, die zu unterschiedlichen Zeiten  $t_r$  gestreut werden, werden durch das  $2\omega$ -Feld unterschiedlich weit ausgelenkt. Entsprechend des semiklassischen Modells folgt das Zentrum der sphärischen Streuverteilungen (gestrichelte Kreise) dem Vektorpotenzial  $-\mathbf{A}(t_r)$  (weiße gestrichelte Kurve). Direkte Elektronen treten dagegen nur bei kleinen Impulsen auf, da diese nur nahe des Maximums des  $\omega$ -Feldes emittiert werden, wo  $A_z(t_i) \approx 0$  gilt. Da das Zentrum der Verteilung direkter Elektronen auch dem Vektorpotenzial  $-\mathbf{A}(t_i)$  folgt, liegen diese ebenfalls auf der weißen gestrichelten Linie. Das charakteristische Verhalten der Verteilung als Funktion der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  kann in einer für (d) ebenfalls bereitgestellten Animation beobachtet werden.

3.23 a.u.. Die Farben der Kreise kennzeichnen, für welche relative Phase die jeweilige Auslenkung auftritt. Für die roten Kreise gilt  $\varphi_{rel} \approx 90^\circ$  und für die schwarzen Kreise  $\varphi_{rel} = 270^\circ$ . Zusätzlich wird in Abbildung 5.4.2(k) untersucht, in welchen Bereichen der Photoelektronenim-

pulsverteilung die Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_y)$  der direkten bzw. gestreuten Elektronen dominiert. Für gestreute Elektronen dominiert die Amplitude im Bereich  $(p_x^2 + p_y^2)^{1/2} < 0.2$  a.u. und  $(p_x^2 + p_y^2)^{1/2} > 1.3$  a.u. (blaue Bereiche), während die Amplitude direkter Elektronen im Bereich  $0.2$  a.u.  $< (p_x^2 + p_y^2)^{1/2} < 1.3$  a.u. (roter Bereich) dominiert. Aufgrund des harmonischen Additionstheorems, ist zu erwarten, dass sich die Phase  $\phi_1(p_x, p_y)$  der gesamten Photoelektronenimpulsverteilung zu der Phase des dominanten Prozesses tendiert. In Bereichen, in denen mehrere Prozesse gleichermaßen beitragen, wird sich die Phase entsprechend zu einem mittleren Phasenwert verschieben.

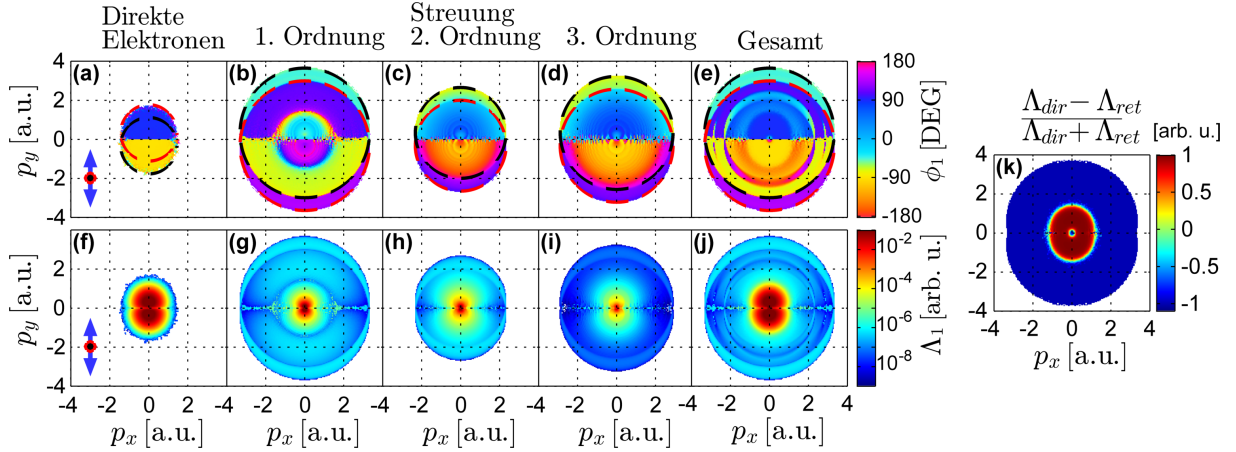


Abbildung 5.4.2: Phase  $\phi_1(p_x, p_y)$  ((a)-(e)) und Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_y)$  ((f)-(j)) von Neon für verschiedene Teilkomponenten der Photoelektronenimpulsverteilung (d. h. direkte Elektronen und gestreute Elektron verschiedener Ordnung), die mit dem vorgestellten erweiterten semiklassischen Modell simuliert wurden. Die schwarzen und roten gestrichelten Kreise markieren die Kontur der Photoelektronenimpulsverteilung für die relativen Phasen, bei denen die betragsmäßige Auslenkung der Verteilung durch das  $2\omega$ -Feld maximal ist. Die maximale Auslenkung tritt ungefähr bei  $\varphi_{rel} \approx 90^\circ$  (rot) und bei  $\varphi_{rel} \approx 270^\circ$  (schwarz) auf. (k) vergleicht die Amplitude  $\Lambda_1$  von direkten und gestreuten Elektronen. Positive Werte (rote Farben) bedeuten, dass die Amplitude der direkten Elektronen in diesem Bereich dominiert, umgekehrt dominiert für blaue Farben die Amplitude gestreuter Elektronen.

## Ergebnisse Neon

Es werden nun in Abbildung 5.4.3 die Phase  $-\phi_1(p_x, p_y)$  der Messung (a) mit den Ergebnissen der erweiterten semiklassischen Simulation (b) und der Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung (c) verglichen. (d) zeigt das Messsignal entlang der  $p_y$ -Achse in Abhängigkeit von  $p_y$  und  $\varphi_{rel}$  auf einer grauen Farbskala. Das Signal ist unabhängig für jede  $p_y$ -Zeile so normiert, dass der Maximalwert Eins und der minimale Wert Null ist. Zusätzlich wird die Phase  $\phi_1(p_x \approx 0$  a.u.,  $p_y)$  der Messung (blaue +), der semiklassischen Simulation (rote Kreise) und der TDSE (grüne Quadrate) aufgetragen. Es ist erkennbar, dass die Phase  $\phi$  über die Beziehung  $-\phi = \varphi_{rel}^{max}$  die relative Phase angibt, für die sich das Elektronensignal maximiert, d. h. die Phase folgt dem weißen Bereich des Photoelektronensignals. Wie entsprechend der vorherigen Untersuchungen zu erwarten ist, ist eine Phasenverschiebung zwischen Bereichen mit vorwiegend gestreuten Elektronen ( $\sim |p_y| > 1.3$  a.u.) und Bereichen mit dominanten direkten

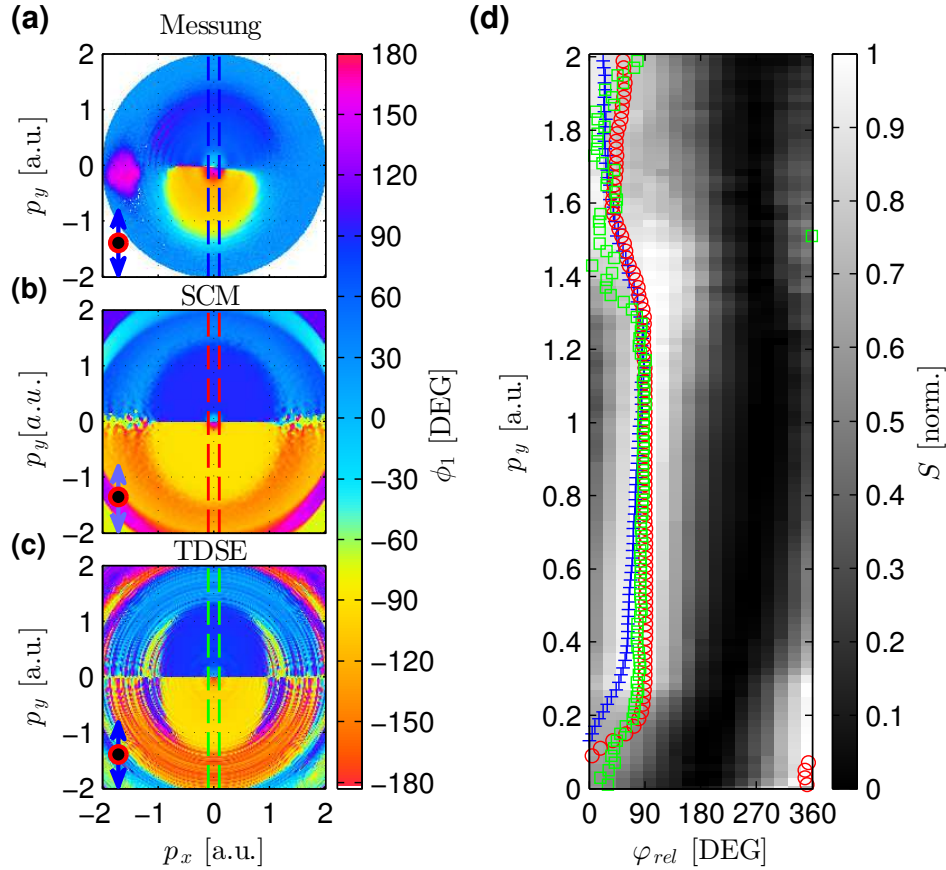


Abbildung 5.4.3: Phase  $\phi_1(p_x, p_y)$  von Neon: (a) Messung, (b) semiklassische Simulation und (c) TDSE. Um den Phasenübergang zwischen verschiedenen Ionisationsprozessen darzustellen, wird das gemessene Signal  $S(p_x \approx 0, p_y, \varphi_{rel})$  entlang der  $p_y$ -Achse in (d) in Grauwerten dargestellt. Die Größe des untersuchten Bereichs ist durch die gestrichelten Linien in (a)-(c) eingezeichnet. Das Signal wird für jeden  $p_y$ -Wert im Bezug zum Maximalwert entlang der jeweiligen Bildzeile normiert. Die aus (a)-(c) entnommenen Phasenwerte des eingezeichneten Bereichs sind für die Messung (blaue +), für die semiklassische Simulation (rote Kreise) und für die TDSE (grüne Quadrate) eingezeichnet. Die gemessenen Daten zeigen einen klaren Übergang bei  $p_y \approx 1.3$  a.u., d. h. zwischen dem Bereich in dem gestreute hochenergetische Elektronen dominieren ( $p_y > 1.3$  a.u.) und dem Bereich mit vorwiegend direkten Elektronen ( $p_y < 1.3$  a.u.). Die Daten des semiklassischen Modells und der TDSE zeigen einen sehr ähnlichen Verlauf.

Elektronen ( $\sim |p_y| < 1.3$  a.u.) zu beobachten. Überraschenderweise tritt bei kleinen lateralen Impulsen ( $\sim |p_y| < 0.2$  a.u.) eine weitere Phasenverschiebung auf. Diese kann durch das erweiterte semiklassische Modell reproduziert werden, indem ein kleiner Abschirmparameter  $\mu$  (z. B.  $\mu = 0.1$ ) für das Yukawa-Potenzial verwendet wird. Bei einem solchen  $\mu$  ist das Potenzial einem Coulomb-Potenzial sehr ähnlich, was zu einer Erhöhung des unter kleinem Winkel  $\theta_{streu}$  gestreuten Elektronensignals führt (siehe Abb. 2.2.3). Für ein solches Yukawa-Potenzial nimmt die Streuwahrscheinlichkeit für kleine Winkel stark zu. Daher die Amplitude der unter kleinem Winkel gestreuten Elektronen stärker werden als die Amplitude der direkten Elektronen. Dies wird auch durch die in diesem Bereich gemessene Phase bestätigt, da diese der simulierten Phase gestreuter Elektronen entspricht. In der TDSE-Rechnung wird die Phasenverschiebung in diesem Bereich ebenfalls wiedergegeben.

Insgesamt zeigen die Messungen als auch beide Simulationen das gleiche Verhalten. Abweichungen treten hier vor allem in Bereichen auf, in denen die Beiträge direkter und gestreuter Elektronen ungefähr gleich stark sind. Dies führt zu einer Mittelung der Phase  $\phi$ , welche empfindlich auf das Verhältnis zwischen direkten und gestreuten Elektronen sowie auf den gewählten Parameter  $\mu$  reagiert.

## Ergebnisse Xenon

Im Vergleich zu der Messung von Neon zeigt die für Xenon gemessene Phase  $\phi(p_x, p_y)$  deutlich vielfältigere Strukturen, z. B. die Struktur links (schwarzes Quadrat) und rechts der  $y$ -Achse in Abbildung 5.4.4(a), die eine auffällige Flügel-Form aufweist. Diese Strukturen treten ebenso für die semiklassische Simulation (b), als auch in der Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung mit dem  $1s$  „Soft-Core“-Potenzial auf (c). Bei der Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung, die mit dem  $2p$ -Zustand eines modifizierten Potenzials in Einzelelektronennäherung berechnet wurde (d), ist die „Flügel“-Struktur nicht sichtbar. Die Unterschiede zwischen beiden TDSE-Rechnungen werden hauptsächlich durch die unterschiedliche Form und den somit verschiedenen differentiellen Wirkungsquerschnitten der verwendeten Potenziale verursacht. Dies demonstriert, dass die Phase  $\phi(p_x, p_y)$  sogar auf kleine Änderungen des Wirkungsquerschnitts sehr sensitiv reagiert.

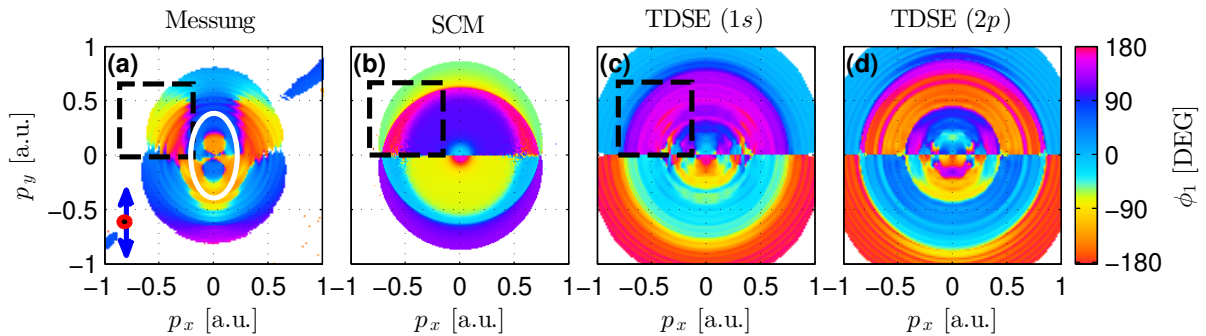


Abbildung 5.4.4: Phase  $\phi_1(p_x, p_y)$  von Xenon. (a) Messung, (b) semiklassisches Modell, (c) Ergebnis der Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung ausgehend von einem  $1s$ -Zustand eines „Soft-Core“-Potenzials sowie von einem  $2p$ -Zustand des in [64,91] gegebenen Modellpotenzials (d).  $I_\omega = 4 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $I_{2\omega} = 6 \times 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $\mu = 0.1$ .

Wie zuvor für Neon demonstriert wurde, erlaubt es die semiklassische Simulation, leicht zwischen direkten und gestreuten Elektronen zu unterscheiden (Abb. 5.4.5(a)-(j)). Der Vergleich der Amplituden  $\Lambda_1(p_x, p_y)$  der direkten (f) und der gestreuten Elektronen (g) bis (i) zeigt, dass die Gesamtamplitude (j) und somit auch die Phase  $\phi_1(p_x, p_y)$  (e) hauptsächlich durch die direkten Elektronen (f) und die gestreuten Elektronen erster Ordnung (g) geprägt wird. Die auffällige Flügel-Struktur entsteht dadurch, dass zwischen beiden Flügeln für  $p_x \approx 0$  a.u. die Amplitude direkter Elektronen dominant wird. Ein Vergleich der Amplituden direkter und gestreuter Elektronen ist in (k) dargestellt. Für rote Bereiche dominiert die Amplitude direkter Elektronen, während für blaue Bereiche gestreute Elektronen dominieren. Zusätzlich wird für Xenon in der Mitte der Verteilung (weiße Ellipse) eine andere Phasenabhängigkeit beobachtet als in diesem Bereich für die Neon-Messung. Semiklassische Simulationen mit größeren  $\mu$  führen für gestreute



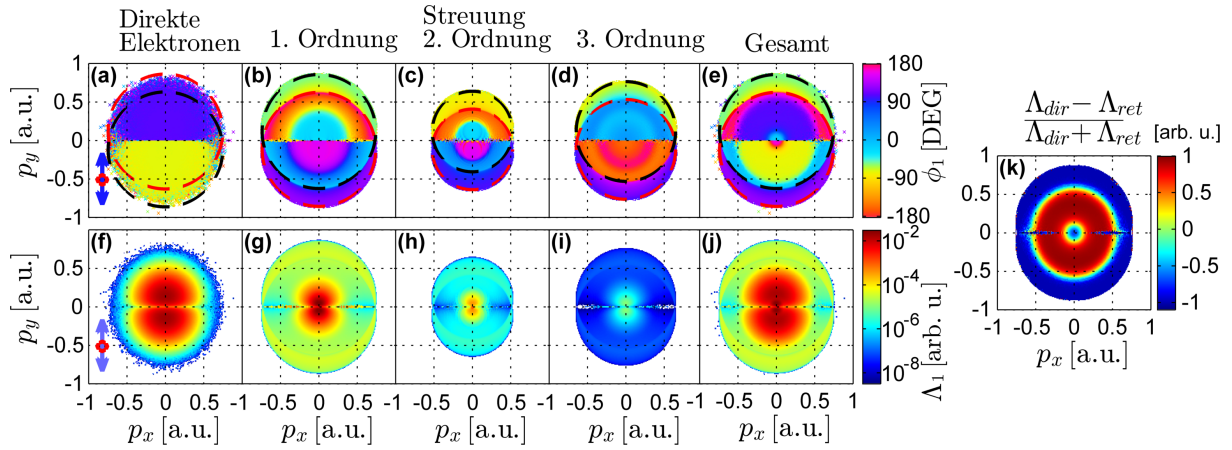


Abbildung 5.4.5: Phase  $\phi_1(p_x, p_y)$  ((a)-(e)) und Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_y)$  ((f)-(j)) von Xenon für verschiedene Teilkomponenten der Photoelektronenimpulsverteilung (d. h. direkte Elektronen und gestreute Elektronen verschiedener Ordnung), die mit dem vorgestellten erweiterten semiklassischen Modell simuliert wurden. Die schwarzen und roten gestrichelten Kreise markieren die Kontur der Photoelektronenimpulsverteilung für die relativen Phasen, bei denen die betragsmäßige Auslenkung der Verteilung durch das  $2\omega$ -Feld maximal ist. Die maximale Auslenkung tritt ungefähr bei  $\varphi_{rel} \approx 90^\circ$  (rot) und bei  $\varphi_{rel} \approx 270^\circ$  (schwarz) auf. (k) vergleicht die Amplitude  $\Lambda_1$  von direkten und gestreuten Elektronen. Positive Werte (rote Farben) bedeuten, dass die Amplitude der direkten Elektronen in diesem Bereich dominiert, umgekehrt dominiert für blaue Farben die Amplitude gestreuter Elektronen.

Elektronen zweiter Ordnung in diesem Bereich zwar zu einer passenden Phasenabhängigkeit, jedoch setzt sich diese in der gesamten Verteilung nicht durch.

## Vergleich und Interpretation

Um die Unterschiede zwischen Neon und Xenon hervorzuheben, werden beide Messungen nebeneinander dargestellt (Abb. 5.4.6). Hierbei ist die unterschiedliche Skalierung der Bildachsen zu beachten. Wie anhand der Simulationen (Abb. 5.4.2 und 5.4.5) zu erwarten ist, gleicht sich die Grundstruktur für beide Messungen. Die Unterschiede werden hauptsächlich durch den für Xenon größeren totalen Wirkungsquerschnitt verursacht. Zudem erfordert die Ionisation von Xenon eine niedrigere Laser-Intensität, wodurch die Distanz der Elektronenauslenkung und die Rückkehrenergie gestreuter Elektronen reduziert wird. Beides führt im Vergleich zu Neon zu einem höheren Anteil gestreuter Elektronen. Da die maximal erreichbaren Impulse für direkte und gestreute Elektronen unterschiedlich mit der Intensität skalieren (für gestreute Elektronen proportional zu  $I$  (Gl. 2.1.23) und für direkte Elektronen proportional zu  $\sqrt{I}$  (Gl. 2.1.8)), ergibt sich außerdem im Verhältnis ein größerer Bereich, in dem sowohl direkte als auch gestreute Elektronen zum Photoelektronenspektrum beitragen. Die Phasenunterschiede im mittleren Bereich des Spektrums können weder durch die semiklassische Simulation, noch durch die Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung reproduziert werden. Ursache dafür können Multielektroneneffekte sein, die von einem Potenzial in Einzelelektronennäherung und im semiklassischen Modell nicht berücksichtigt sind.

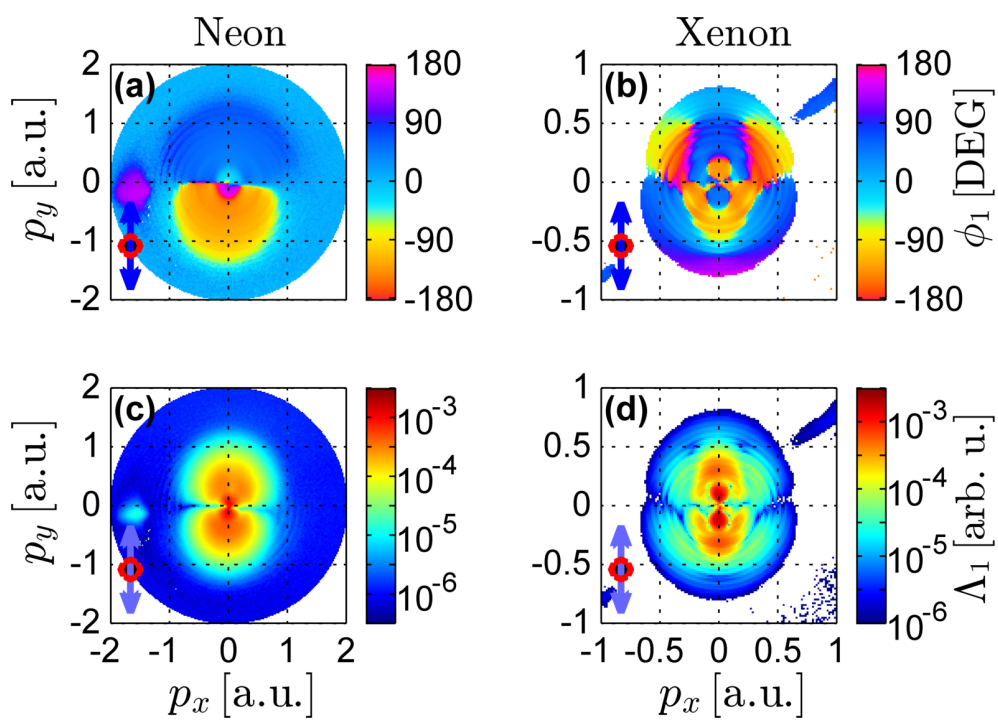


Abbildung 5.4.6: Vergleich der gemessenen Phase  $\phi_1(p_x, p_y)$  und Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_y)$  von Neon (a), (c) und Xenon (b), (d).

## 6 Streudynamiken in parallelen Zwei-Farben-Feldern

Während im vorherigen Kapitel die Phasenabhängigkeit direkter und gestreuter Elektronen in orthogonalen Zwei-Farben-Feldern untersucht wurde, werden in diesem Kapitel parallele Zwei-Farben-Felder im kurzwelligen Infrarotbereich ( $\lambda_\omega = 1800$  nm,  $\lambda_{2\omega} = 900$  nm) verwendet. Die Verwendung längerer Wellenlängen bieten den Vorteil, dass bei gleichbleibender Intensität  $I_\omega$  ein kleinerer Keldysh-Parameter erreicht wird, und somit die Bedingungen für die Tunnelionisation besser erfüllt werden. Außerdem erhöht sich die Rückkehrenergie der Elektronen, wodurch in den Spektren weitere Merkmale wie die Niedrigenergiestruktur (LES) [21, 22] und ihre gabelförmige Erweiterung [3] senkrecht zu Polarisationsachse beobachtet werden können. Ein Nachteil bei der Messung mit längeren Wellenlängen ist, dass der totale Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{total}$  mit erhöhter Rückkehrenergie abnimmt (siehe Abb. 2.2.2 (b)) und so zu einer niedrigeren Streuwahrscheinlichkeit führt. Zusätzlich wird das zurückkehrende Wellenpaket mit zunehmender Flugzeit zwischen Ionisationszeit  $t_i$  und Rückkehrzeit  $t_r$  verbreitert, wodurch die Streuwahrscheinlichkeit ebenfalls verringert wird [1]. Dies macht Messungen von Photoelektronenimpulsverteilungen zu einer Herausforderung, wenn die Verteilung gestreuter Elektronen vollständig erfasst werden soll [129, 130].

Abbildung 6.0.1 (a) zeigt ein typisches Xenon-Spektrum bei  $\lambda_\omega = 1800$  nm, in dem der Bereich hochenergetischer rückgestreuter Elektronen (Plateau) [20, 83] mit einem grünen Rechteck, der Bereich mit der Gabelstruktur mit einem blauen Rechteck und der Bereich niedrigenergetischer Elektronen durch ein rotes Rechteck hervorgehoben ist. In einer vergrößerten Ansicht sind in (b) die einzelnen Zinken der Gabelstruktur gut erkennbar, während in (c) eine Vielzahl von Strukturen erkennbar ist. Die senkrechten Interferenzstreifen gehen auf die sogenannte Holografiestruktur vorwärtsgestreuter Elektronen zurück, welche mit direkten Elektronen, die im selben Viertel des Laserzyklus emittiert werden, interferieren [24, 131, 132]. Weiterhin sind der Peak der Niedrigenergiestruktur sowie ATI-Ringe [14] sichtbar.

Bei einer Messung mit parallelen Zwei-Farben-Feldern können beide Feldkomponenten durch die parallele Ausrichtung der Polarisationen konstruktiv bzw. destruktiv interferieren, wobei die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i, \varphi_{rel}) \propto \exp\left[-\frac{2\kappa^3}{3|E(t_i, \varphi_{rel})|}\right]$  (Gl. 2.1.7) in Abhängigkeit von der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  variiert wird. Somit wird das Signal von Elektronen, die zum Zeitpunkt  $t_i$  ionisiert werden, mit der relativen Phase moduliert. Dies eröffnet die prinzipielle Möglichkeit, mithilfe einer Phase-der-Phase-Analyse des modulierten Elektronensignals Rückschlüsse auf die Ionisationszeit  $t_i$  zu ziehen [133, 134]. Eine Ermittlung der Ionisationszeit ist jedoch keinesfalls trivial, da durch das  $2\omega$ -Feld neben der Ionisationswahrscheinlichkeit auch die Elektronentrajektorien und somit die Rückkehrzeiten, Rückkehrimpulse und Streuwahrscheinlichkeiten moduliert werden. Zudem können mehrere Trajektorien zum gleichen Endimpuls führen, sodass nur das

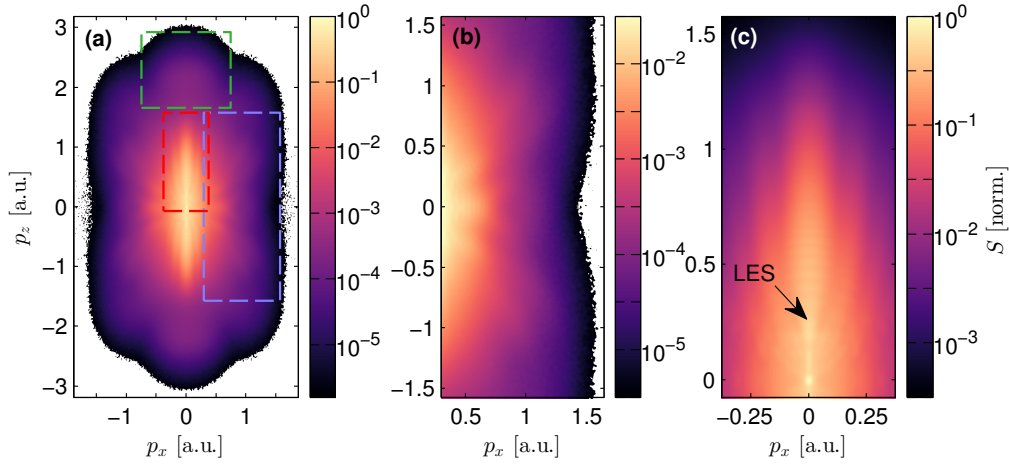


Abbildung 6.0.1: (a) Photoelektronenimpulsverteilung von Xenon in einem linear polarisierten Laserfeld ( $\lambda = 1800 \text{ nm}$ ,  $I_\omega \approx 4 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ ). Die in blau und rot eingerahmten Bereiche werden in (b) und (c) in einer Nahaufnahme dargestellt. Die Intensität wurde anhand des  $10U_p$ -Signalabfalls bei  $p_z \approx 3 \text{ a.u.}$  kalibriert.

gewichtete Mittel der Ionisationszeit mehrerer Trajektorien bestimmt werden kann. Der Frage, ob und mit welcher Genauigkeit Informationen über die Ionisationszeiten aus den phasenabhängigen Photoelektronenimpulsverteilungen ermittelt werden können, wird in diesem Kapitel nachgegangen. Dazu werden mit dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Hochenergie-VMI phasenabhängige Photoelektronenimpulsverteilungen von Xenon gemessen und mit Ergebnissen des erweiterten semiklassischen Modells verglichen. Dabei wird die Möglichkeit genutzt, im semiklassischen Modell den Einfluss des  $2\omega$ -Feldes selektiv nur auf die Ionisationswahrscheinlichkeit oder nur auf die Elektronentrajektorien einwirken zu lassen, um die Phasenabhängigkeit aufgrund beider Einflussfaktoren voneinander entkoppelt zu untersuchen. Dabei werden auch die Auswirkungen verschiedener Verhältnisse  $\epsilon$  der Feldamplituden zwischen dem  $\omega$ - und  $2\omega$ -Feld auf die Phasenabhängigkeiten untersucht.

Es stellt sich heraus, dass die Modulation der Ionisationswahrscheinlichkeit die Phasenabhängigkeit der Photoelektronenimpulsverteilungen dominiert. Das gleichzeitige Auftreten einer Phasenabhängigkeit aufgrund der Modifikation der Elektronentrajektorien führt jedoch zu einer kleinen Verschiebung der Phasenabhängigkeit der Ionisation, sodass die aus ihr gewonnenen mittleren Ionisationszeiten  $\bar{t}_i$  um bis zu 80 as verschoben sind. Der Einfluss aufgrund der Modifikation der Elektronentrajektorien kann auch für sehr kleine  $\epsilon$  nicht vernachlässigt werden.

## 6.1 Experimenteller Aufbau

Um ein Zwei-Farben-Feld im kurzwelligen infraroten Bereich zu erzeugen, wird das in Abschnitt 4.1 beschriebene OPA-System (HE-TOPAS) verwendet, um die Ausgangsleistung des Thales Titan:Saphir Lasers ( $\nu = 1 \text{ kHz}$ ,  $\lambda = 798 \text{ nm}$ ,  $\tau \approx 35 \text{ fs}$ ,  $\mathcal{E} = 10 \text{ mJ}$ ) in den kurzwelligen Infrarotbereich ( $\lambda_\omega = 1800 \text{ nm}$ ,  $\tau \approx 60 \text{ fs}$ ,  $\mathcal{E} = 1.5 \text{ mJ}$ ) zu konvertieren. Das parallele Zwei-Farben-Feld wird in einem kollinearen Setup, welches dem für orthogonale Zwei-Farben-Felder vorgestellten Setup ähnelt, erzeugt. Das Setup besteht aus einem  $250 \mu\text{m}$  dicken BBO-Kristall, einem Paar

Quarzglaskeilen und einer zusätzlichen, speziell für die verwendeten Wellenlängen  $\lambda_\omega$  und  $\lambda_{2\omega}$  angefertigten Wellenplatte (92  $\mu\text{m}$  Quarzkristall), die für  $\lambda_\omega$  als  $\lambda/2$ -Wellenplatte und für  $\lambda_{2\omega}$  als  $\lambda$ -Wellenplatte fungiert. Sie wird genutzt, um die nach dem BBO orthogonal zueinander polarisierten Felder parallel auszurichten, wobei die lineare Polarisation beider Feld-Komponenten durch einen breitbandiger CODIXX-Polarisator sichergestellt wird (siehe Abb. 4.1.4 (b)). Bei den genutzten Wellenlängen ist ein kompensierendes Element wie der zuvor verwendete Kalzit-Kristall nicht nötig, da im kurzwelligen Infrarotbereich bereits die Raumluft im Strahlengang ausreicht, um die geringen Gruppengeschwindigkeitsunterschiede zwischen beiden Wellenlängen zu kompensieren (siehe Tabelle 4.2).

Das parallele Zwei-Farben-Feld wird mit einem sphärischen Spiegel mit Brennweite  $f = 125 \text{ mm}$  durch Rückfokussierung in die Interaktionszone des in Abschnitt 4.2 vorgestellten Hochenergie-VMI-Spektrometers mit dicker Linse fokussiert. In diesem Experiment wird im Gegensatz zu der Messung in Kapitel 5 eine konventionelle Geometrie für die Ausrichtung der Polarisationen verwendet, bei der das ionisierende  $\omega$ -Feld parallel zum Detektor ausgerichtet ist. Aus Gründen der Konsistenz wird auch bei diesem Experiment die Beziehung  $\mathbf{E}_\omega \parallel \mathbf{e}_z$  bei der Ausrichtung der Laborkoordinaten beibehalten (siehe Abb. 6.1.1). Das VMI-Spektrometer misst somit die Verteilung  $W(p_x, p_z) = \int W(p_x, p_y, p_z) dp_y$ . Dabei können Impulse  $p_r = \sqrt{p_x^2 + p_z^2} \leq 5 \text{ a.u.}$  erfasst werden.

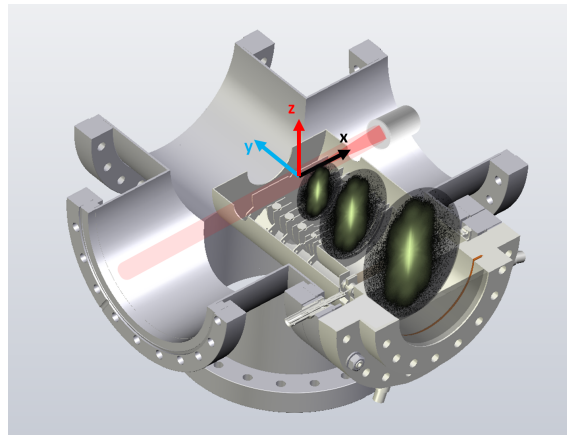


Abbildung 6.1.1: Hochenergie-VMI-Spektrometer mit eingezeichneten Laborkoordinaten. Die Polarisation des parallelen Zwei-Farben-Feldes ist in  $z$ -Richtung orientiert. Bei dieser Ausrichtung wird von dem Detektor die projizierte Elektronenimpulsverteilung  $W(p_x, p_z)$  gemessen. Die Messung für Xenon wurde bei  $I_\omega = 4 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $I_{2\omega} = 4 \times 10^{11} \text{ W cm}^{-2}$  durchgeführt.

Die Störsignale sekundärer Elektronen und das Rauschen des MCP-Detektors werden minimiert, indem die Spannungsversorgung der MCP-Rückseite mit einem Hochspannungsschalter (BEHLKE GHTS60) geschaltet wird, sodass der Detektor nur für den kurzen Zeitraum, in dem die Photoelektronen auftreffen, aktiv ist. Die Photoelektronensignale werden mit einer CMOS-Kamera (ANDOR Neo) aufgenommen, die jeweils mit 0.4 s Belichtungszeit (400 Laserpulse) akkumuliert werden. Dabei wird in den einzelnen Aufnahmen das Rauschen des Kamerasensors und das Streulicht des Phosphorschirms durch Subtraktion eines Offset-Wertes entfernt, bevor die Akkumulation durchgeführt wird (Details in Abschnitt 4.2). Während der Messung der phasenabhängigen Photoelektronenspektren wird die relative Phase alle 40 s variiert, um Fluktuationen und langsame Leistungsverschiebungen der Laserquelle gleichmäßig über alle ge-

messenen relativen Phasen zu mitteln. Für die Xenon-Messung wird eine akkumulierte Messzeit von 67 min pro relativer Phase erreicht, die zwischen  $\varphi_{rel} = 0^\circ$  und  $\varphi_{rel} = 360^\circ$  in Schritten von  $\Delta\varphi_{rek} \approx 32.5^\circ$  variiert wurde. Um diese aufwendige Messung durchzuführen, wurde in Matlab eine Messsoftware programmiert, die die nötigen Messschritte automatisiert durchführt, sodass der Experimentator nur noch die Stabilität des Lasersystems gewährleisten muss. Als Ergebnis erhält man nahezu rauschfreie Photoelektronenimpulsverteilungen mit einem Dynamikumfang von etwa sechs Größenordnungen (siehe Abb. 6.0.1).

Aufgrund der niedrigen (Rück)Streuwahrscheinlichkeit der Elektronen ist eine solch aufwendige Messung mit langer Messzeit notwendig, um die vollständige Photoelektronenimpulsverteilung zu erfassen. Dies trifft besonders für die hier verwendeten Wellenlängen zu, da das Signal rückgestreuter Elektronen aufgrund der erhöhten Flugzeit und Rückkehrenergie der Elektronen mit  $\lambda^{-4}$  [129] skaliert. Selbst bei der langen Messzeit von mehr als einer Stunde pro Spektrum werden gerade genug Ereignisse gemessen, um die Phasenabhängigkeit der vollständigen Photoelektronenimpulsverteilung zu untersuchen. Um die Statistik der Messwerte noch weiter zu verbessern, werden die Spektren daher entsprechend der Symmetrieeigenschaften  $W(-p_x, p_z, \varphi_{rel}) = W(p_x, p_z, \varphi_{rel})$  und  $W(p_x, p_z, \varphi_{rel}) = W(p_x, -p_z, \varphi_{rel} + \pi)$  symmetrisiert.

## 6.2 Messergebnisse

Ergebnis dieser Messreihe sind zwölf Photoelektronenspektren von Xenon, die bei unterschiedlichen relativen Phasen erfasst wurden. Die Spektren entsprechen dabei der in Abbildung 6.0.1 (a) gezeigten Photoelektronenimpulsverteilung. Die durch das  $2\omega$ -Feld verursachten Modulationen des Spektrums sind in der logarithmischen Darstellung über sechs Größenordnungen kaum sichtbar. Um die phasenabhängige Modulation zu verdeutlichen, wird in Abbildung 6.2.1 (a) das normierte Photoelektronensignal, welches über die in (b) durch Quadrate markierten Impulsbereiche gemittelt wurde, dargestellt. Die Intensität  $I_\omega = 4 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$  wird anhand des in (b) eingezeichneten  $10U_p$ -Grenzwertes der maximal erreichbaren Elektronenenergie festgelegt. Dieser zeigt sich im Spektrum als bemerkenswert scharfe Kante, ab der für höhere Impulse  $|p_z|$  praktisch keine Einzelelektronenergebnisse mehr erfasst werden.

Die ausgewählten Impulsbereiche liegen auf verschiedenen Zinken der sogenannten Gabelstruktur, deren Ursprung bereits in Abschnitt 3.5 erläutert wurde. Die Modulation zwischen 20 % bis 40 % des jeweiligen Maximalwerts werden in dieser linearen Darstellung besonders deutlich und können durch eine Kosinusfunktion (farbige Linien) beschrieben werden. Dabei weisen die Kosinusfunktionen für die verschiedenen Impulsbereiche eine unterschiedliche Phase auf. Die erste Harmonische einer Phase-der-Phase-Analyse liefert für alle Impulse des Spektrums die Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  (b) und die Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  (c) einer solchen Kosinusfunktion ( $\Lambda_1 \cos(\varphi_{rel} + \phi_1) + C$ ). Die Strukturen der Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  entstehen in Bereichen des Spektrums, in denen zwei oder mehr Beiträge deutlich unterschiedlicher Phase  $\phi_1$  miteinander konkurrieren, aber auch an Übergängen, wo zusätzliche Beiträge gleicher Phase hinzukommen. Die vielfältigen Strukturen der Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  als auch der Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  lassen sich fast vollständig mit dem Verlauf der Zinken der Gabelstruktur erklären. Dazu werden die mit einer semiklassischen Simulation bei gleicher Intensität  $I_\omega = 4 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$  und Wellenlänge

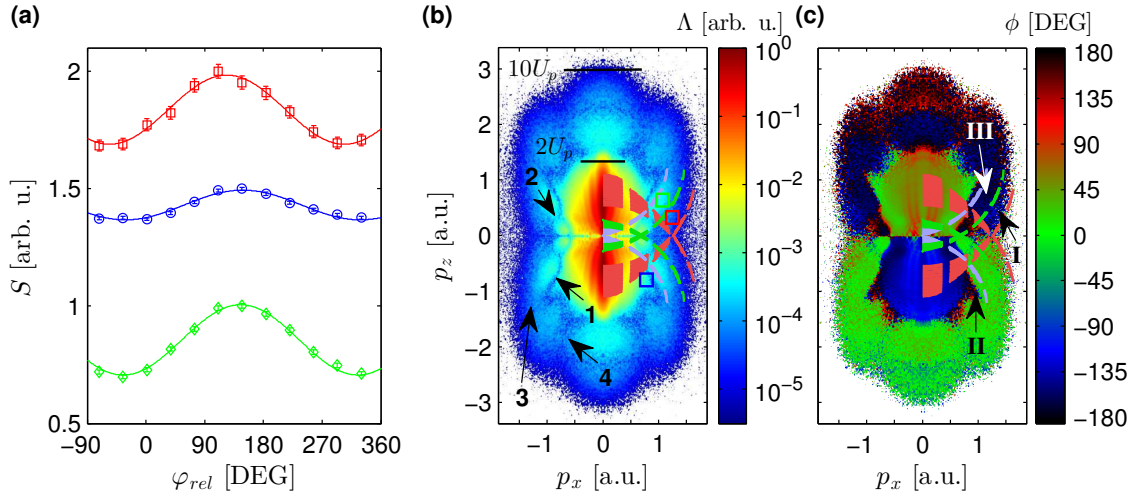


Abbildung 6.2.1: (a) Normalisiertes phasenabhängiges Messsignal  $S(\varphi_{rel})$ , welches für die in (b) markierten Bereiche in der Region der Gabelstruktur des Photoelektronenimpulsspektrums gemittelt wurde. Die Kurven stellen eine an die jeweiligen Daten angepasste Kosinusfunktion dar. Die roten und blauen Datenpunkte bzw. Kurven sind für die Darstellung um 1 bzw. 0.5 nach oben verschoben. (b) und (c) zeigen Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  und die Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$ , die mittels der Phase-der-Phase-Analyse ermittelt werden. Die Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  zeigt, wie stark das Signal des Photoelektronenspektrums von der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  abhängt. Durch Anwenden der Relation  $\varphi_{rel}^{max} = -\phi_1$  liefert die Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  die relative Phase  $\varphi_{rel}^{max}(p_x, p_z)$ , bei der sich das Signal für jeden Impuls maximiert. Die durch semiklassische Berechnung ermittelte Begrenzung der Gabelstruktur (gestrichelte Linien) passen exakt zu den entsprechenden Merkmalen der gemessenen Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  und Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$ . Die Markierungen werden im Text erläutert.

$\lambda_\omega = 1800$  nm berechneten Begrenzungen der Gabelstruktur in (b) und (c) eingezeichnet. Es ist zu betonen, dass die Begrenzung den äußeren Rand der jeweiligen Zinken der Gabelstruktur darstellt, die einer Elektronenstreuung 1. Ordnung (rot), 2. Ordnung (blau) und 3. Ordnung (grün) zugeordnet werden. Die eigentlichen Gabelzinken verlaufen innerhalb der Krümmung, wie für die Streuung 2. Ordnung in (c) anhand des blauen Zinken (II) deutlich wird.

Entlang des Rands dieses Zinkens (gestrichelte blaue Linie) findet sich in der Amplitude in (b) bei Markierung 1 ein Minimum. Ursache dafür ist, dass die Beiträge der Streuung 2. Ordnung mit Beiträgen der 3. Ordnung, welche eine um etwa  $180^\circ$  verschobene Phasenabhängigkeit haben, konkurrieren. Die Modulation beider Signale wird dort destruktiv überlagert. Dementsprechend ist die Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  in diesen Bereichen ebenfalls niedrig, was in dem beobachteten Minimum resultiert. Dieser Effekt tritt für alle Phasensprünge (z. B. von grün zu blau) in (c) auf. Auch das Minimum 2 ist auf einen Phasenunterschied zwischen den sich kreuzenden Gabelzinken entlang der roten gestrichelten Linien zurückzuführen. Die Minima 3 und 4 werden dagegen durch Minima des differentiellen Wirkungsquerschnitts für einen Streuwinkel  $\theta \approx 90^\circ$  und  $\theta \approx 140^\circ$  verursacht.

Weiterhin fällt auf, dass die Amplitude beim Übergang vom Bereich des Gabelzinkens 1. Ordnung (I) zum Bereich 3. Ordnung (III), um fast eine Größenordnung ansteigt. Dies ist ein starker Hinweis darauf, dass die Elektronentrajektorien, die zur dritten Rückkehr streuen, in diesem Bereich die Modulation des Elektronensignals dominieren.

Ebenfalls interessant ist das impulsabhängige Bestimmtheitsmaß  $R^2(p_x, p_z)$  einer angepassten Kosinusfunktion, welches in Abbildung 6.2.2(a) dargestellt ist. Die phasenabhängige Modulation wird über große Bereiche des Spektrums mit einer Kosinusfunktion die gut ( $R^2 > 0.7$ ) beschrieben. Abweichungen treten aufgrund der niedrigen Zählrate vor allem in den Randbereichen der Verteilung auf, aber auch in Bereichen, in denen die Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  (b) einen Phasensprung aufweist, wo die Modulation von Signalen mit stark unterschiedlicher Phase destruktiv überlagert wird. Um die Statistik weiter zu verbessern, wird für die quantitative Auswertung der Phasenabhängigkeit der Gabelstruktur in Abschnitt 6.6 über mehrere Datenpunkte gemittelt.

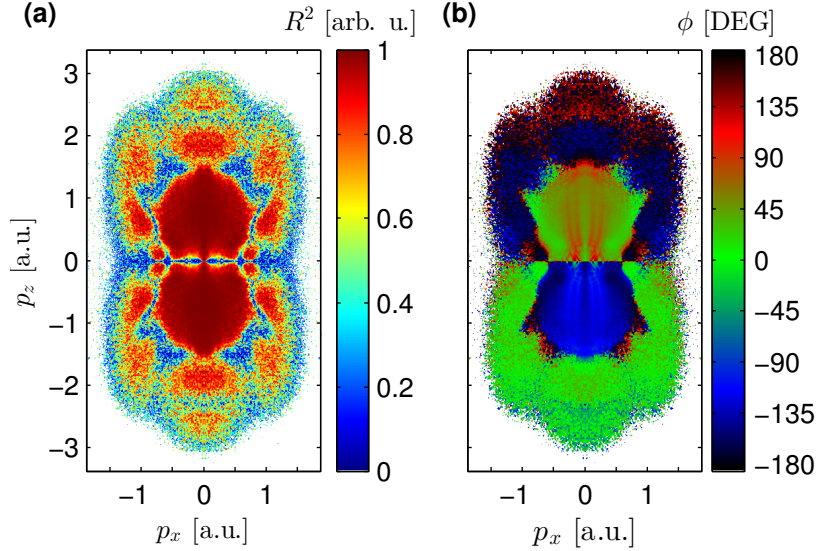


Abbildung 6.2.2: (a) Bestimmtheitsmaß  $R^2(p_x, p_z)$  einer angepassten Kosinusfunktion für jeden Impuls der Elektronenimpulsverteilung  $W(p_x, p_z, \varphi_{rel})$ . Zum direkten Gegenüberstellung ist in (b) nochmals die Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  dargestellt.

### 6.3 Semiklassische Simulation der Phasenabhängigkeiten

Um die Messergebnisse zu analysieren, wird die in Kapitel 3 erläuterte und bereits im vorherigen Kapitel angewandte erweiterte semiklassische Simulation verwendet. Anstelle des differentiellen Wirkungsquerschnitts eines Yukawa-Potenzials wird jedoch ein für Xenon numerisch ermittelter differentieller Wirkungsquerschnitt verwendet (Details siehe Abschnitt 2.2). Es wurden mehrere Simulationen mit Intensität  $I_\omega = 4 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$  durchgeführt, wobei die Intensität der  $2\omega$ -Komponente  $I_{2\omega}$  variiert wurde. Zudem wurden Simulationen durchgeführt, bei denen jeweils nur die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i$  oder die Elektronentrajektorien durch das  $2\omega$ -Feld beeinflusst wurden, um die Auswirkungen beider Beiträge auf die Phasenabhängigkeit der Photoelektronenimpulsverteilung zu untersuchen. Die Ergebnisse der vollständigen semiklassischen Simulation ( $2\omega$ -Feld wirkt auf Ionisationswahrscheinlichkeit und auf die Elektronentrajektorien) sind in Abbildung 6.3.1 gezeigt. Wie bereits im vorherigen Kapitel wird dabei die Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  (a) bis (e) und die Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  (f) bis (j) für verschiedene Klassen von Elektronen, d. h. direkte Elektronen, gestreute Elektronen verschiedener Ordnung und die Gesamtverteilung betrachtet.



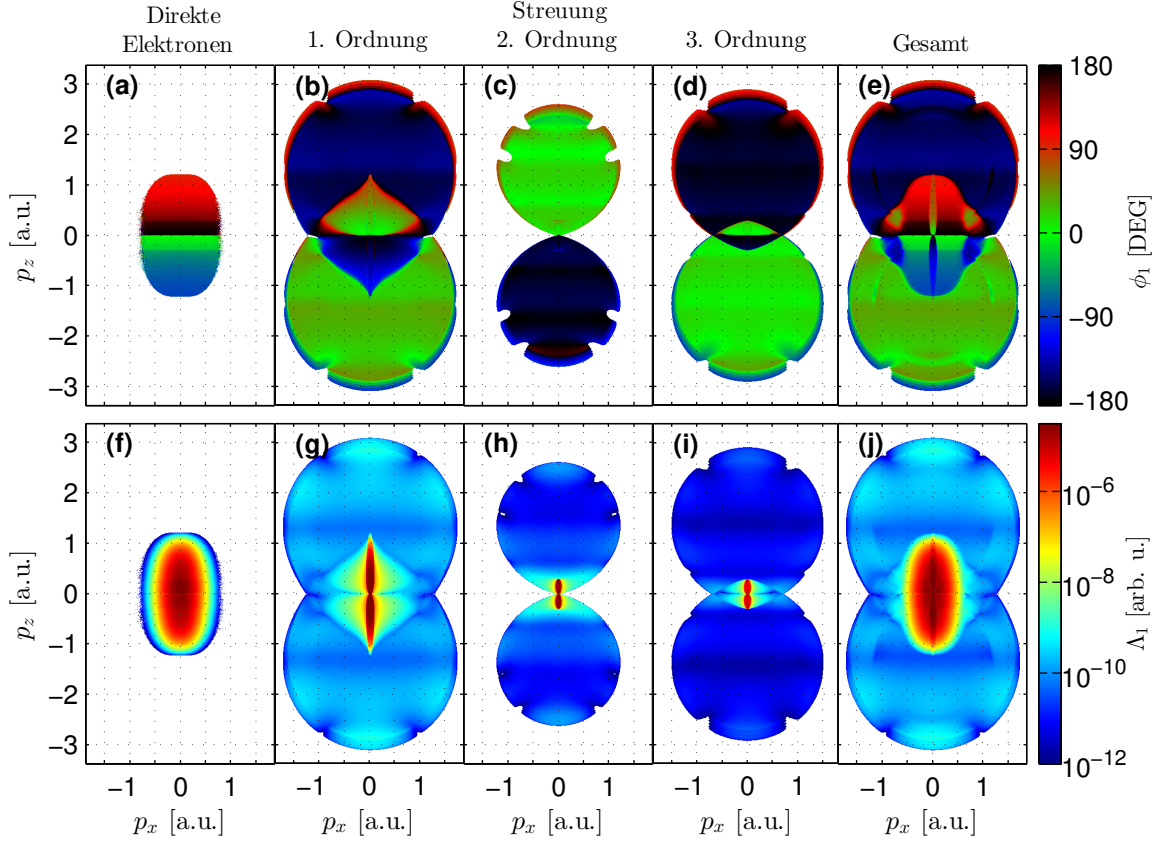


Abbildung 6.3.1: Semiklassische Simulation der Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  (a) bis (e) und Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  (f) bis (j) von Xenon für verschiedene Klassen von Elektronen.  $I_\omega = 4 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$  und  $I_{2\omega} = 4 \times 10^{11} \text{ W cm}^{-2}$ .

Die Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  (e) und die Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  (j) der simulierten Gesamtverteilung der Photoelektronen zeigen eine qualitativ sehr gute Übereinstimmung mit den Messdaten (Abb. 6.2.1(b) und (c)), wenngleich die Amplitude der Streuung 2. und 3. Ordnung in der Simulation geringer ausfällt, als es die Messung aufgrund der ausgeprägten Gabelstruktur vermuten lässt. Ursache dafür ist, dass der totale Wirkungsquerschnitt und somit die Streuwahrscheinlichkeit für die Rückkehr erster Ordnung sehr groß wird, und daher ein Großteil des Wellenpakets bereits bei der ersten Rückkehr gestreut wird. In der Simulation wird in einer vereinfachten Betrachtung der so bereits gestreute Anteil des Wellenpakets für weitere Streuung nicht mehr berücksichtigt, obwohl für die Anteile der Streuverteilung, die unter kleinen Streuwinkel gestreut werden, trotzdem die Möglichkeit besteht, zu Streueignissen höherer Ordnung beizutragen. Daher wird in der Simulation die Streuung erster Ordnung gegenüber höheren Ordnungen in ihrer Gewichtung etwas bevorzugt.

Bevor die Messergebnisse in Abschnitt 6.6 in einer quantitativen Analyse weiter mit semiklassischen Simulationen verglichen werden, wird untersucht, wie die relative Phase des Zwei-Farben-Feldes die Ionisationswahrscheinlichkeit und die Elektronentrajektorien beeinflusst. Die Analyse zeigt dabei, wie mithilfe der relativen Phase der Ionisationsprozess kontrolliert werden kann. Weiterhin lässt sich ableiten, wie aus den phasenabhängigen Photoelektronenimpulsverteilungen Informationen über die Ionisationszeit, rekonstruiert werden können.

## 6.4 Phasenabhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit

Es folgt zunächst eine Betrachtung, wie sich die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  in Abhängigkeit von der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  verhält, um die direkte Abhängigkeit der Phase  $\phi_1$  von der Ionisationszeit  $t_i$  darzustellen.

In einem parallelen Zwei-Farben-Feld ist das elektrische Feld ohne Berücksichtigung der Einhüllenden durch

$$E(t, \varphi_{rel}) = E_\omega [\cos(\omega t) + \epsilon \cdot \cos(2\omega t + \varphi_{rel})] \quad (6.4.1)$$

gegeben, wobei  $\epsilon$  das Verhältnis der Feldamplituden des  $\omega$ - und des  $2\omega$ -Feldes angibt. Durch Variation der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  wird die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  (siehe auch Gl. 2.1.7) ebenfalls stark moduliert, da diese exponentiell von der elektrischen Feldstärke zum Ionisationszeitpunkt  $t_i$  abhängt. Dabei steigt die Ionisationswahrscheinlichkeit mit steigendem elektrischen Feld  $|E|$  kontinuierlich an (Abb. 2.1.1(a)). In Abbildung 6.4.1(b), (c) und (d) wird  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  von Xenon für verschiedene Verhältnisse  $\epsilon$  dargestellt, wobei  $t_i$  über eine Laserperiode  $T$  variiert wird. Das elektrische Feld für  $\epsilon = 0$  ist in (a) dargestellt.

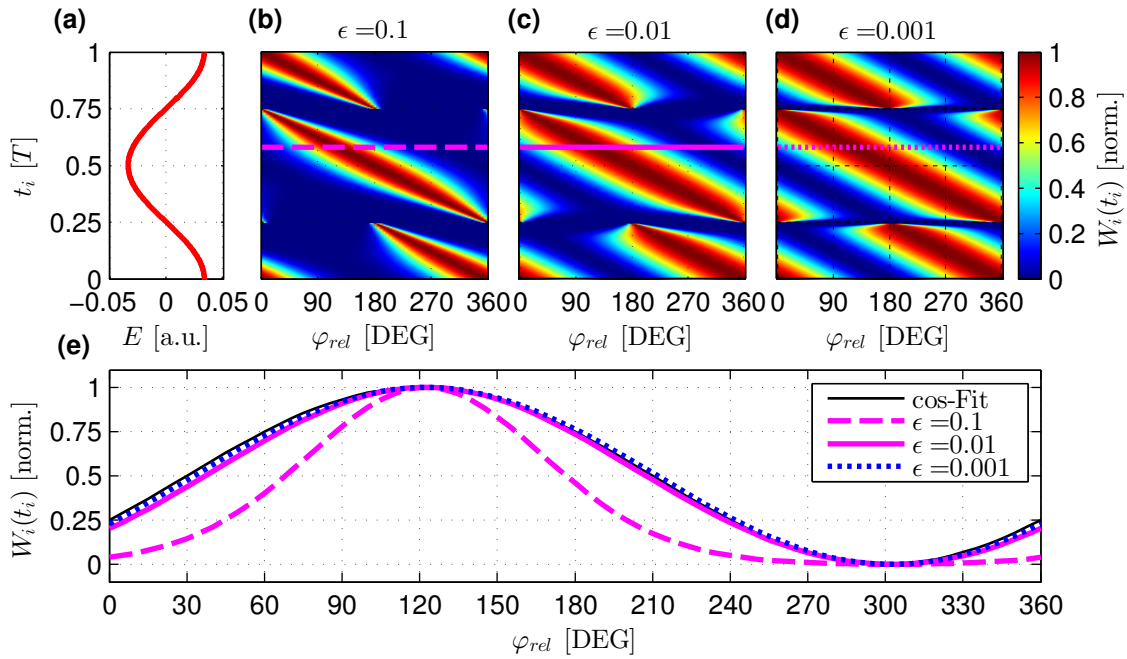


Abbildung 6.4.1: Betrachtung der von  $\varphi_{rel}$  abhängigen Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  von Xenon für einen Laserzyklus ( $0 \leq t_i \leq T$ ). (a) zeigt das elektrische Feld für  $\epsilon = 0$  bei einer Intensität von  $4 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ . (b), (c) und (d) zeigen die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  für  $\epsilon = 0.1$ ,  $\epsilon = 0.01$  und  $\epsilon = 0.001$ . Da die Ionisationswahrscheinlichkeit über den Laserzyklus stark variiert, wurde für die Darstellung die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  für jedes  $t_i$  (jede Bildzeile) so normiert, dass das Maximum den Wert Eins und das Minimum den Wert Null hat. (e) zeigt die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i = 0.58T, \varphi_{rel})$  entlang der magentafarbenen Linien in (b), (c) und (d) sowie eine angepasste Kosinusfunktion.

Wie man in (b), (c) und (d) für verschiedene  $\epsilon$  sieht, verschiebt sich die relative Phase  $\varphi_{rel}^{max}$ , für die die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  maximiert wird, linear mit  $t_i$ . Dabei maximiert sich die Ionisationswahrscheinlichkeit für die relativen Phasen, für die  $|E(t_i, \varphi_{rel})|$  maximiert

wird. Nach Gl. 6.4.1 gilt somit

$$\varphi_{rel}^{max}(t_i) = -2\omega t_i \quad \text{wenn } \cos(\omega t_i) > 0 \quad (6.4.2)$$

$$\varphi_{rel}^{max}(t_i) = \pi - 2\omega t_i \quad \text{wenn } \cos(\omega t_i) < 0. \quad (6.4.3)$$

Die Phasenabhängigkeit zwischen Halbzyklen mit positivem elektrischen Feld und negativem elektrischen Feld ist um  $\pi$  verschoben. Für die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i = 0.58T, \varphi_{rel})$  einer einzelnen Ionisationszeit ( $e$ ), wird deutlich, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  für  $\epsilon \ll 0.1$  durch eine Kosinusfunktion beschrieben werden kann.

Bei der Phase-der-Phase-Analyse von  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  liefert die erste Harmonische einer Fourier-Transformation die Phase  $\phi_1$  einer solchen Kosinusfunktion ( $\Lambda_1 \cos(\varphi_{rel} + \phi_1) + C$ ), sodass mit  $\varphi_{rel}^{max}(t_i) = -\phi_1$

$$-\phi_1 = -2\omega t_i \quad \text{wenn } \cos(\omega t_i) > 0 \quad (6.4.4)$$

$$-\phi_1 = \pi - 2\omega t_i \quad \text{wenn } \cos(\omega t_i) < 0 \quad (6.4.5)$$

gilt. Obwohl für  $\epsilon = 0.1$  die Modulation nicht mehr durch eine Kosinusfunktion beschrieben werden kann, liefert die Phase-der-Phase-Analyse auch in diesem Fall die zur Ionisationszeit  $t_i$  passende Phase  $\phi_1$ . Es lässt sich also festhalten, dass in der von  $\varphi_{rel}$  abhängigen Modulation der Signalstärke einer einzelnen Trajektorie die Information über die Ionisationszeit innerhalb des Laserzyklus enthalten ist, welche mit der Phase-der-Phase-Analyse ermittelt werden kann. Dafür ist es jedoch nötig, das Signal der einzelnen Trajektorien zu messen. Da jedoch in den Photoelektronenspektren mehrere Trajektorien zu demselben Impuls führen, überlagern sich in der Messung mehrere mit unterschiedlicher Phase modulierte Signale. Daher kann in der Messung höchstens eine mittlere, mit der Ionisationswahrscheinlichkeit gewichtete Ionisationszeit

$$\bar{t}_i = \frac{\sum (W_i(t_i) \cdot t_i)}{\sum W_i(t_i)} \quad (6.4.6)$$

abgefragt werden.

Um zu untersuchen, ob und mit welcher Genauigkeit  $\bar{t}_i$  ermittelt werden kann, wird ein einfacher Fall betrachtet, bei dem zwei Trajektorien zum selben Endimpuls führen. Abbildung 6.4.2 zeigt am Beispiel von Xenon ( $\epsilon = 0$ ,  $I_\omega = 4 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ ) den Endimpuls  $\mathbf{p}_f(t_i, t_r)$  von Elektronen, die zum Zeitpunkt  $t_i$  ionisiert und zum Zeitpunkt  $t_r$  der ersten Rückkehr unter einem Streuwinkel  $\theta_{Streu} = 180^\circ$  zurückgestreut werden. Der Endimpuls ergibt sich entsprechend Gleichung 2.1.27 durch

$$\mathbf{p}_f(t_i, t_r) = -\mathbf{A}(t_r) - \mathbf{p}_r(t_i, t_r) = -2 \cdot \mathbf{A}(t_r) + \mathbf{A}(t_i). \quad (6.4.7)$$

Abbildung 6.4.2(b) zeigt jeweils beide Ionisationszeiten der Trajektorien, die zum selben Endimpuls  $\mathbf{p}_f$  führen. Beide Trajektorien werden entsprechend ihrer Flugzeit  $\tau = t_r - t_i$  als lange bzw. kurze Trajektorie bezeichnet. Die rote Linie zeigt die entsprechend Gleichung 6.4.6 mit der Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i)$  (dargestellt in (a)) gewichtete mittlere Ionisationszeit  $\bar{t}_i$ . Diese tendiert zu der Trajektorie mit höherer Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i)$ , wobei die Gewichtung dieser Trajektorie mit zunehmender Differenz der Ionisationszeiten  $\Delta t = |t_{lang} - t_{kurz}|$

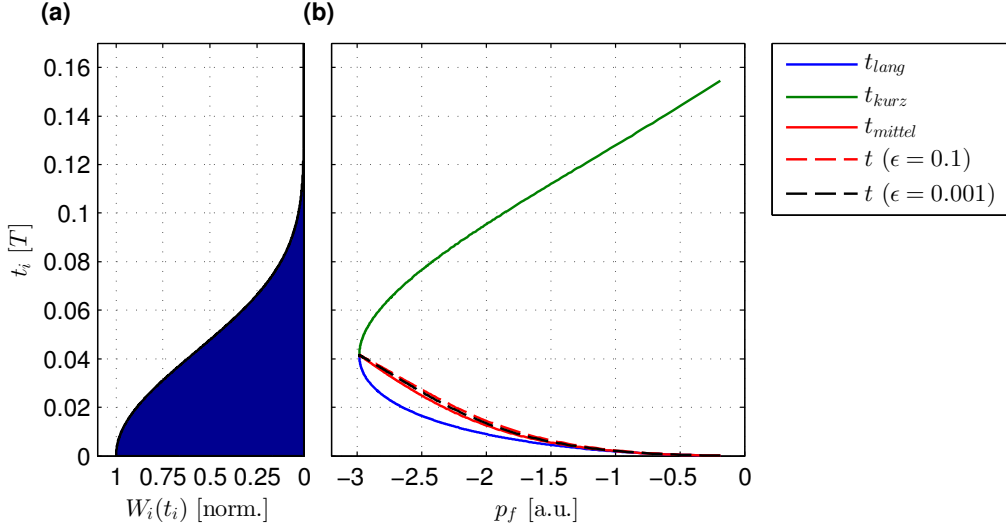


Abbildung 6.4.2: Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i)$  (a) und Endimpulse  $\mathbf{p}_f$  (b) langer (blaue Linie) bzw. kurzer Trajektorien (grüne Linie) für eine Rückstreuung unter  $\theta_{Streu} = 180^\circ$  mit  $\epsilon = 0$ . Die rote Linie gibt für jeden Endimpuls  $\mathbf{p}_f$  die zwischen beiden Trajektorien gemittelte Ionisationszeit  $\bar{t}_i$  an. Dabei werden beide Trajektorien entsprechend ihrer Ionisationswahrscheinlichkeit gewichtet (siehe Gl. 6.4.6). Die gestrichelten roten und schwarzen Linien stellen die mit einer Phase-der-Phase-Analyse ermittelten Ionisationszeiten  $t_i$  für  $\epsilon = 0.1$  und  $\epsilon = 0.001$  dar.

zunimmt. In einem parallelen Zwei-Farben-Feld ( $\epsilon > 0$ ) wird das Signal beider Trajektorien, die zu dem selben Impuls führen, mit unterschiedlicher Phasenabhängigkeit moduliert. Da beide Trajektorien den selben Impuls haben und somit am selben Ort auf dem Detektor landen, kann jedoch nur die Summe beider phasenabhängiger Signale gemessen werden. Das summierte Signal kann entsprechend des harmonischen Additionstheorems ebenfalls durch eine Kosinusfunktion beschrieben werden. Die aus der Phase  $\phi_1$  dieser Kosinus-Modulation mit Gl. 6.4.4 ermittelte Ionisationszeit (rote und schwarze gestrichelte Linie für  $\epsilon = 0.1$  bzw.  $\epsilon = 0.001$  in Abb. 6.4.2(b)) entspricht annähernd der nach Gl. 6.4.6 erwarteten mittleren Ionisationszeit  $\bar{t}_i$ , wobei eine geringe Verschiebung in Richtung der Trajektorie mit niedrigerer Ionisationswahrscheinlichkeit stattfindet. Die maximale Abweichung zu  $\bar{t}_i$  beträgt etwa 0.4% der Periodendauer, was bei  $\lambda = 1800$  nm etwa 24 as entspricht.

Die geringen Abweichungen entstehen durch unterschiedlich starke Modulationen der Ionisationsrate  $W_i(t_i)$  der kurzen und der langen Trajektorien durch die  $2\omega$ -Komponente des Feldes. Dies wird an einem konkreten Beispiel der Trajektorien, die zum Endimpuls  $\mathbf{p}_f = -2.5$  a.u. führen, dargestellt. Die Ionisationszeit der langen Trajektorie ist  $t_1 = 0.0165T$ , die der kurzen Trajektorie ist  $t_2 = 0.0766T$ . Für das elektrische Feld gilt

$$\mathbf{E}_1(t_1, \varphi_{rel}) = E_\omega [\cos(\omega t_1) + \epsilon \cdot \cos(2\omega t_1 + \varphi_{rel})] \mathbf{e}_z \quad (6.4.8)$$

$$\mathbf{E}_2(t_2, \varphi_{rel}) = E_\omega [\cos(\omega t_2) + \epsilon \cdot \cos(2\omega t_2 + \varphi_{rel})] \mathbf{e}_z. \quad (6.4.9)$$

Das elektrische Feld besteht also aus einem konstanten Term  $E_\omega \cos(\omega t_i)$  und einem phasenabhängigen Term  $\epsilon E_\omega \cos(2\omega t_i + \varphi_{rel})$ , der das elektrische Feld mit einer Amplitude von  $\epsilon E_\omega$  moduliert. Setzt man die Modulationsamplitude ins Verhältnis mit dem konstanten Term ergibt

sich

$$\frac{\epsilon E_\omega}{E_\omega \cos(\omega t_1)} = \frac{\epsilon}{|\cos(\omega t_1)|}. \quad (6.4.10)$$

Da für beide Trajektorien  $\cos(\omega t_1) = 0.9946$  und  $\cos(\omega t_2) = 0.8864$  gegeben ist folgt

$$\frac{\epsilon}{|\cos(\omega t_1)|} \leq \frac{\epsilon}{|\cos(\omega t_2)|}. \quad (6.4.11)$$

Für die Trajektorie, die bei der niedrigeren Feldstärke ionisiert wird, führt das  $2\omega$ -Feld also zu einer größeren relativen Modulation der elektrischen Feldstärke. Die unterschiedlich starke Modulation wird exponentiell auf die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  übertragen. Abbildung 6.4.3 zeigt dazu die phasenabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  beider Trajektorien, als auch die summierte Ionisationswahrscheinlichkeit ( $W_i(t_1, \varphi_{rel}) + W_i(t_2, \varphi_{rel})$ ) (rote Linie) beider Trajektorien, welche jeweils auf den Mittelwert normiert sind. Die Modulationsamplitude relativ zum Mittelwert der Ionisationswahrscheinlichkeit ist für die kurze Trajektorie (grüne Linie) deutlich größer, als für die lange Trajektorie (blaue Linie).

Entsprechend des harmonischen Additionstheorems führt die größere (relative) Modulationsamplitude für die Superposition  $W_i(t_1, \varphi_{rel}) + W_i(t_2, \varphi_{rel})$  zu einer stärkeren Verschiebung der Phase  $\phi$  in Richtung der Phase der kurzen Trajektorie, als es bei einer äquivalenten relativen Amplitude der Fall wäre.

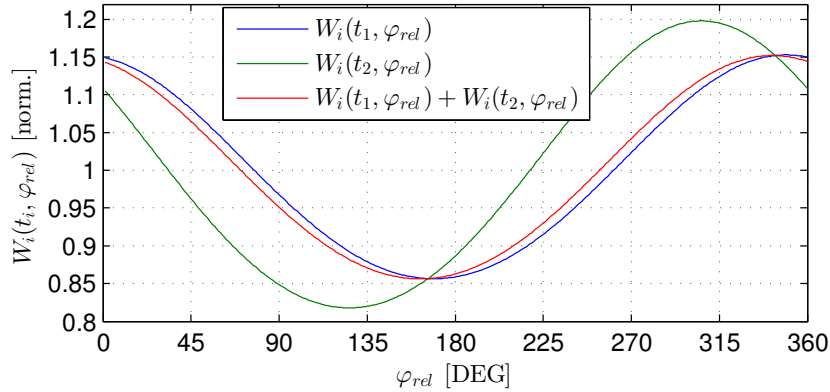


Abbildung 6.4.3: Phasenabhängige Modulation der Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  im parallelen Zwei-Farben-Feld ( $\epsilon = 0.01$ ) für die lange ( $t_1 = 0.0165T$ ) und kurze Trajektorie ( $t_2 = 0.0766T$ ), welche zum Endimpuls  $\mathbf{p}_f = -2.5$  a.u. führen. Zudem ist die Summe  $W_i(t_1, \varphi_{rel}) + W_i(t_2, \varphi_{rel})$  dargestellt. Um die relativen Amplituden der phasenabhängigen Oszillation zu vergleichen, sind die Kurven auf ihren Mittelwert normiert.

## 6.5 Einfluss der Änderungen der Elektronentrajektorien

In der bisherigen Betrachtung wurde nur der Einfluss des  $2\omega$ -Feldes auf die Ionisationswahrscheinlichkeit berücksichtigt und Auswirkungen auf die Trajektorien vernachlässigt.

Wenn das  $2\omega$ -Feld auch auf die Trajektorien wirkt, werden für jede Ionisationszeit  $t_i$ , für die eine Rückkehr des Elektrons zum Mutterion möglich ist, der Rückkehrimpuls  $\mathbf{p}_r$ , die Rückkehrzeit  $t_r$  sowie die Verschiebung der sphärischen Streuerverteilung um  $-\mathbf{A}(t_r, \varphi_{rel})$  in Abhängigkeit der

relativen Phase  $\varphi_{rel}$  variiert. Um diesen Einfluss für verschiedene Verhältnisse  $\epsilon$  zu quantifizieren, wird in Abbildung 6.5.1(a) für die Ionisationszeit  $t_i = 0.05T$  gezeigt, in welchem Bereich die Rückkehrzeiten variieren. Abbildung 6.5.1(b) und (c) zeigen den Rückkehrimpuls  $\mathbf{p}_r(\varphi_{rel})$  und die Rückkehrzeit  $t_r(\varphi_{rel})$  (c). Dabei beträgt die Variation um den Mittelwert bei  $\epsilon = 0.1$  etwa 4% und bei  $\epsilon = 0.01$  etwa 0.4%.

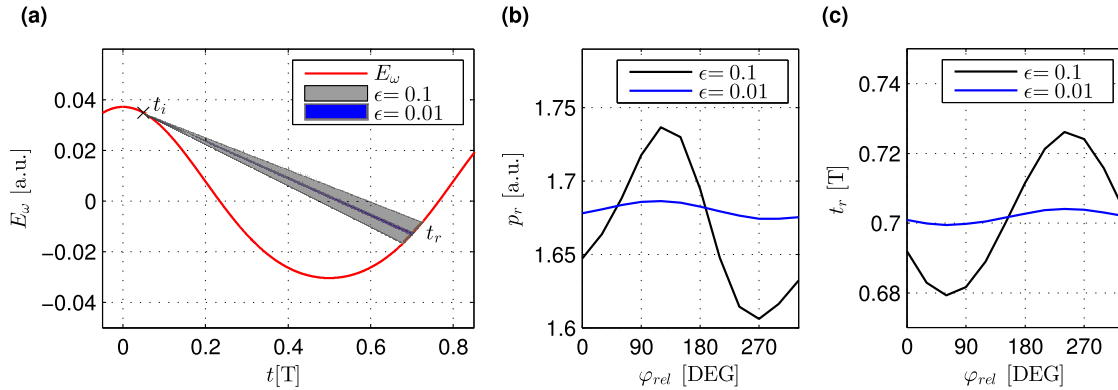


Abbildung 6.5.1: Beeinflussung der Rückkehrzeit  $t_r$  und des Rückkehrimpulses  $\mathbf{p}_r$  im parallelen Zwei-Farben-Feld in Abhängigkeit von  $\epsilon$ . (a) Bereich der möglichen Rückkehrzeiten  $t_r$  für Ionisationszeit  $t_i = 0.05T$ . (b) phasenabhängiger Rückkehrimpuls  $\mathbf{p}_r(\varphi_{rel})$  und (c) Rückkehrzeit  $t_r(\varphi_{rel})$  für dieselbe Ionisationszeit.

Die Phasenabhängigkeit von Rückkehrzeit und Rückkehrimpuls beeinflusst den Radius und die Position der Streuverteilungen. Daher tragen bei der Betrachtung des phasenabhängigen Signals  $S(p_x, p_z, \varphi_{rel})$  eines diskreten Impulses, je nach relativer Phase, unterschiedliche Trajektorien zu diesem Signal bei. Weiterhin wird durch die Änderung des Rückkehrimpulses auch der totale Wirkungsquerschnitt und damit die Streuwahrscheinlichkeit variiert. Diese Vielzahl an Einflüssen macht es sehr schwierig, eine analytische Beschreibung der Phasenabhängigkeit zu postulieren, daher wird hier nur eine empirische Abschätzung des Einflusses der Trajektorienänderung auf die Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  vorgenommen.

Dazu werden jeweils Simulationen für drei Fälle untersucht:

1. Die  $2\omega$ -Komponente des elektrischen Feldes beeinflusst nur die Ionisationswahrscheinlichkeit
2. Die  $2\omega$ -Komponente des elektrischen Feldes beeinflusst nur die Trajektorien
3. Sowohl die Ionisationswahrscheinlichkeit als auch auf die Trajektorien werden durch die  $2\omega$ -Komponente des elektrischen Feldes beeinflusst.

Für diese drei Fälle wird in Abbildung 6.5.2(a), (b) und (c) die resultierende Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  der gesamten Photoelektronenimpulsverteilung dargestellt. Zudem werden in (d) die Amplituden  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  zu Fall 1 ( $\Lambda_{ion}$ ) und Fall 2 ( $\Lambda_{trj}$ ) verglichen, um abzuschätzen, welche Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  sich bei vollständiger Berücksichtigung des  $2\omega$ -Feldes (Fall 3) durchsetzt.

Für den zweiten Fall (b), ist aufgrund der vielfältigen Beeinflussung der Rückkehrbedingungen der Trajektorien eine deutlich komplexere Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  zu beobachten, als es bei ausschließlicher Beeinflussung der Ionisationswahrscheinlichkeit in (a) der Fall ist. Die Unterschiede für die Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  zwischen Fall 3 (c) und Fall 1 (a) sind eher gering. Ursache dafür ist, dass die Amplitude  $\Lambda_{ion}(p_x, p_z)$  für Fall 1 deutlich größer ist als die Amplitude  $\Lambda_{trj}(p_x, p_z)$  für Fall 2.

Dies wird in (d) über die Asymmetrie  $(\Lambda_{ion} - \Lambda_{trj}) / (\Lambda_{ion} + \Lambda_{trj})$  der Amplituden verdeutlicht, da ein Großteil der Werte größer 0.5 ist. Ein Wert von 0.5 bedeutet, dass die Amplitude  $\Lambda_{ion}$  für diesen Impuls dreimal größer ist als  $\Lambda_{trj}$ . Ein Vergleich der Asymmetrie für verschiedene Werte  $\epsilon$  (Abbildung 6.5.3(a) bis (c)), zeigt deutlich, dass der Einfluss der Trajektorienänderung auch für sehr kleine  $\epsilon$  vorhanden ist, da die Asymmetrie in etwa konstant bleibt. Das Verhältnis der gemittelten Amplituden  $\bar{\Lambda}_{ion}$  und  $\bar{\Lambda}_{trj}$  wird in Abbildung 6.5.3(d) genauer quantifiziert, indem gezeigt wird wie diese mit dem Verhältnis  $\epsilon$  skalieren.

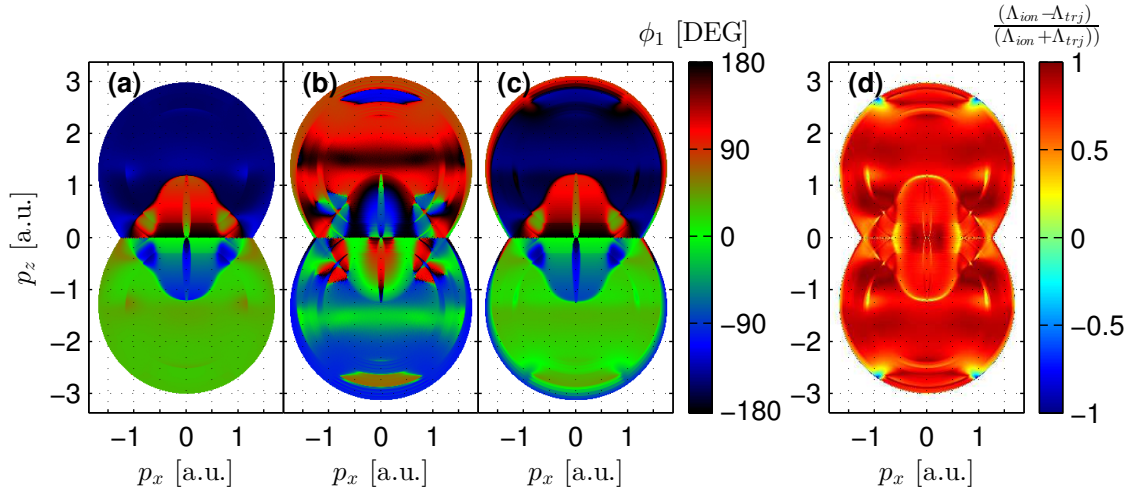


Abbildung 6.5.2: Untersuchung der Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  mit  $\epsilon = 0.1$  für den Fall, dass das  $2\omega$ -Feld (a) nur die Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i$  beeinflusst, (b) nur die Trajektorien nach dem Ionisationszeitpunkt beeinflusst und (c) sowohl Ionisationswahrscheinlichkeit als auch die Trajektorien beeinflusst. (d) zeigt die Asymmetrie der Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  für Fall (a)  $\Lambda_{ion}$  und (b)  $\Lambda_{trj}$ . Werte größer Null bedeuten, dass die Amplitude für  $\Lambda_{ion}$ , die durch die Änderung der Ionisationswahrscheinlichkeit hervorgerufen wird, dominant ist.

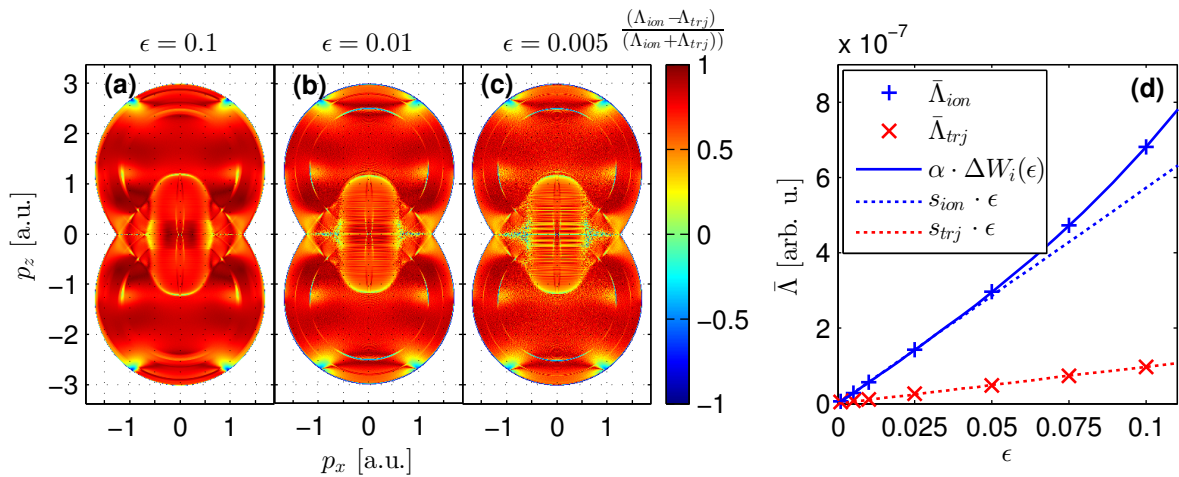


Abbildung 6.5.3: Asymmetrie  $(\Lambda_{ion} - \Lambda_{trj}) / (\Lambda_{ion} + \Lambda_{trj})$  für  $\epsilon = 0.1$  (a),  $\epsilon = 0.01$  (b) und  $\epsilon = 0.005$  (c). (d) zeigt die über die gesamte Impulsverteilung gemittelten Amplituden  $\bar{\Lambda}_{ion}(\epsilon)$  (+) und  $\bar{\Lambda}_{trj}(\epsilon)$  (x). Die linearen Anpassungen (gepunktete Linien) verdeutlichen die lineare Abhängigkeit der Amplituden im Bereich  $\epsilon < 0.05$ .  $\bar{\Lambda}_{ion}$  geht für  $\epsilon > 0.05$  in einen exponentiellen Verlauf über (blaue Linie).

Für  $\epsilon < 0.05$  skalieren beide gemittelte Amplituden linear mit  $\epsilon$ , d. h. das Verhältnis  $\bar{\Lambda}_{trj}(\epsilon)/\bar{\Lambda}_{ion}(\epsilon)$  entspricht in diesem Bereich dem Verhältnis der Steigungen  $s_{trj}$  und  $s_{ion}$  einer linearen Anpassung (gepunktete Linien). Mit  $s_{trj} = 0.98 \cdot 10^{-6}$  und  $s_{ion} = 5.73 \cdot 10^{-6}$  ergibt sich ein Verhältnis von

$$\frac{\bar{\Lambda}_{trj}}{\bar{\Lambda}_{ion}} = \frac{s_{trj}}{s_{ion}} = 0.17. \quad (6.5.1)$$

Mit  $\epsilon > 0.05$  folgt  $\bar{\Lambda}_{ion}(\epsilon)$  einem exponentiellen Verlauf und das Amplitudenverhältnis  $\bar{\Lambda}_{trj}(\epsilon)/\bar{\Lambda}_{ion}(\epsilon)$  nimmt langsam ab. Dabei ist zu erwarten, dass  $\bar{\Lambda}_{ion}(\epsilon)$  proportional zur Modulation der Ionisationswahrscheinlichkeit  $W_i(t_i, \varphi_{rel})$  (Gl. 2.1.7) durch die relative Phase  $\varphi_{rel}$  skaliert. In einem parallelen Zwei-Farben-Feld mit

$$E(t_i, \varphi_{rel}) = E_\omega [\cos(\omega t_i) + \epsilon \cdot \cos(2\omega t_i + \varphi_{rel})] \quad (6.5.2)$$

gilt für Ionisationszeiten nahe eines Feldmaximums  $\max|E(\varphi_{rel})| \approx E_\omega \cdot [1 + \epsilon]$  bzw.  $\min|E(\varphi_{rel})| \approx E_\omega \cdot [1 - \epsilon]$ . Somit wird die Modulationsamplitude  $\bar{\Lambda}_{ion}(\epsilon)$  näherungsweise durch

$$\Delta W_i(\epsilon) = \frac{W_i(E_\omega \cdot [1 + \epsilon]) - W_i(E_\omega \cdot [1 - \epsilon])}{2} \quad (6.5.3)$$

beschrieben.  $\Delta W_i(\epsilon)$  wird über einen Faktor  $\alpha$  an die Werte der Amplitude  $\bar{\Lambda}_{ion}(\epsilon)$  angepasst (blaue Linie), wobei eine sehr gute Übereinstimmung erreicht wird.

Der Einfluss der durch Trajektorienänderungen verursachten Modulation auf die insgesamt resultierende Phase  $\phi_{ges}$  wird in Abbildung 6.5.4 dargestellt. Dabei soll die maximale Abweichung  $\Delta\phi = |\phi_{ges} - \phi_{ion}|$  ermittelt werden, die bei einem Amplitudenverhältnis  $\Lambda_{ion}/\Lambda_{trj} = 0.17$  auftreten kann. Dazu wird ein Signal  $S_0 = 1$  einmal mit  $S_{ion}(\varphi_{rel}) = \Lambda_{ion} \cos(\varphi_{rel} + \phi_{ion}) + S_0$  (blaue Kurve) und einmal  $S_{trj}(\varphi_{rel}) = \Lambda_{trj} \cdot \cos(\varphi_{rel} + \phi_{trj}) + S_0$  (rote Kurve) moduliert, wobei  $\Lambda_{ion} = 0.1$ ,  $\Lambda_{trj} = 0.017$  und  $\phi_{ion} = 0$  sind. Wirken beide Modulationen gleichzeitig auf das Signal ein, ergibt sich  $S_{ges} = \Lambda_{ion} \cos(\varphi_{rel} + \phi_{ion}) + \Lambda_{trj} \cdot \cos(\varphi_{rel} + \phi_{trj}) + S_0$  (grüne Kurve).

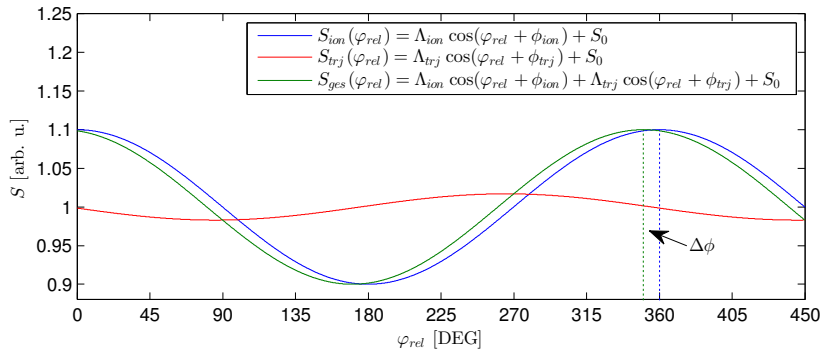


Abbildung 6.5.4: Abschätzung der durch Trajektorienänderungen induzierten Phasenverschiebung  $\Delta\phi = |\phi_{ges} - \phi_{ion}|$ . Das Signal  $S_0 = 1$  wird sowohl durch die phasenabhängige Änderung der Ionisationswahrscheinlichkeit als auch durch phasenabhängige Trajektorienänderungen moduliert, wodurch sich  $S_{ion}(\varphi_{rel})$  (blaue Kurve) respektive  $S_{trj}(\varphi_{rel})$  (rote Kurve) ergibt. Wirken beide Einflüsse gleichzeitig auf das Signal ein, erhält man insgesamt  $S_{ges}(\varphi_{rel})$  (grüne Kurve). Mit  $\Lambda_{ion} = 0.1$ ,  $\Lambda_{trj} = 0.017$  und  $\phi_{ion} = 0$  folgt eine maximale Phasenverschiebung von  $\Delta\phi \approx 10^\circ$ , wenn  $|\phi_{ion} - \phi_{trj}| \approx 100^\circ$  gilt.



Entsprechend dem harmonischen Additionstheorem kann das gesamte Signal  $S_{ges}$  auch durch

$$S_{ges}(\varphi_{rel}) = \Lambda_{ges} \cos(\varphi_{rel} + \phi_{ges}) + S_0 \quad (6.5.4)$$

beschrieben werden, wobei

$$\Lambda_{ges} = \sqrt{\Lambda_{ion}^2 + \Lambda_{trj}^2 + \Lambda_{ion}\Lambda_{trj} \cos(\phi_{trj} - \phi_{ion})} \quad (6.5.5)$$

und

$$\phi_{ges} = \arctan \frac{\Lambda_{ion} \sin \phi_{ion} + \Lambda_{trj} \sin \phi_{trj}}{\Lambda_{ion} \cos \phi_{ion} + \Lambda_{trj} \cos \phi_{trj}}. \quad (6.5.6)$$

Dabei ist  $\phi_{ges}$  gegenüber  $\phi_{ion}$  um  $\Delta\phi$  verschoben und hängt sowohl von den Amplituden  $\Lambda_{ion}$  und  $\Lambda_{trj}$  als auch von den Phasen  $\phi_{ion}$  und  $\phi_{trj}$  ab. Mit den verwendeten Parametern ergibt sich eine maximale Verschiebung  $\Delta\phi \approx 10^\circ$ , wenn  $|\phi_{ion} - \phi_{trj}| \approx 100^\circ$  gilt. Für die Ermittlung einer Ionisationszeit entsprechend Gleichung 6.4.4 ( $t_i = \phi_{ges}/2\omega$ ) entspricht die Verschiebung  $\Delta\phi$  einer Zeitverschiebung von  $\Delta t = 0.014T_\omega$ . Bei  $\lambda_\omega = 1800 \text{ nm}$  sind das 83 as. Es ist zu betonen, dass dies eine Abschätzung der Obergrenze der Verschiebung ist, die bei einem Amplitudenverhältnis  $\Lambda_{ion}/\Lambda_{trj} = 0.17$  auftreten kann. Da das Amplitudenverhältnis  $\Lambda_{ion}(p_x, p_z)/\Lambda_{trj}(p_x, p_z)$  nicht über das gesamte Spektrum konstant ist, kann die Verschiebung in einzelnen Bereichen des Spektrums sowohl größer als auch kleiner ausfallen.

Um die Phasenverschiebung  $\Delta\phi$  aufgrund der Trajektorienänderung zu minimieren, muss das Amplitudenverhältnis  $\bar{\Lambda}_{trj}/\bar{\Lambda}_{ion}$  verringert werden. Dies ist aufgrund des exponentiellen Verlaufs von  $\bar{\Lambda}_{ion}(\epsilon)$  für größere Werte  $\epsilon > 0.05$  möglich, jedoch kann das  $2\omega$ -Feld für größere  $\epsilon$  nicht mehr als kleine Störung betrachtet werden und der fundamentale Zusammenhang zwischen Ionisationszeit  $t_i$  und Rückkehrzeit  $t_r$  ist aufgehoben. Dies führt ab  $\epsilon \geq 0.2$  zu sogenannten „Caustic“-Effekten [135,136], wobei mehrere Trajektorien mit unterschiedlicher Ionisationszeit  $t_i$  zur selben Rückkehrzeit  $t_r$  führen können. Es ist daher sinnvoll,  $\epsilon$  auf den Bereich  $0.05 < \epsilon < 0.15$  zu beschränken. Entscheidend ist jedoch, dass auch in diesem optimierten Bereich, ein gekoppelter Einfluss des  $2\omega$ -Feldes auf die Ionisationswahrscheinlichkeit und die Elektronentrajektorien existiert, der nicht vernachlässigt werden kann. Die Bedeutung beider Einflüsse wurde kürzlich auch in [137] im Bezug auf für die Photoemission von Nanospitzen erkannt.

## 6.6 Phasenabhängigkeit der Gabelstruktur

Die Analyse der Simulationsergebnisse im vorangegangenen Kapitel hat gezeigt, dass das Ziel, anhand der Phasenabhängigkeit von Photoelektronenimpulsverteilungen in parallelen Zwei-Farben-Feldern, Informationen über den Ionisationsprozess zu erlangen, durch die nichttriviale Kopplung der Änderung von Ionisationswahrscheinlichkeit und Elektronentrajektorien erschwert wird. Um diese Informationen rekonstruieren zu können, muss ein geeigneter Teil der Photoelektronenimpulsverteilung ausgewählt werden, in dem die verschiedenen Beiträge gut unterschieden werden können. Dazu wird der Bereich der Gabelstruktur ausgewählt, da ihr Ursprung bekannt ist [3] und ihre Lage deutlich von den direkten Elektronen separiert ist. Zudem treten in diesem Bereich des Spektrums keine sichtbaren Interferenzmuster auf.

Eine gezielte Auswertung der Phase-der-Phase  $\phi_1$  entlang einzelner Zinken der Gabelstruktur, die unterschiedlichen Streuordnungen zugeordnet werden können, ist somit leicht umsetzbar, da die einzelnen Zinken im Spektrum in Abbildung 6.6.1 sowohl in der Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  (a) als auch in der Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  (b) deutlich zu erkennen sind. Die Unterscheidbarkeit der Streuordnungen macht die Gabelstruktur besonders attraktiv, da jeder Streuordnung ein wohldefinierter Bereich möglicher Ionisationszeiten zugeordnet werden kann (siehe auch Abb. 3.5.2). Es werden nun der gemessene und der simulierte Phasenverlauf entlang der einzelnen Zinken der Gabelstruktur untersucht. Dabei liegen die Zinken näherungsweise auf Ringsegmenten, die um den Punkt  $(p_x = 0, p_z = \sqrt{2 \cdot 2U_p})$  zentriert sind, wobei der Radius in etwa dem maximalen Rückkehrimpuls der Elektronen für die jeweilige Streuordnung entspricht.

Die verwendeten Ringsegmente sind für die jeweilige Streuordnung mit roten (Streuung 1. Ordnung), blauen (2. Ordnung) und grünen (3. Ordnung) gestrichelten Linien eingezeichnet. Der Winkel  $\beta$  auf dem Ringsegment wird in (a) definiert. Um den Phasenverlauf entlang der Zinken darzustellen, wird für das über einen Bereich von  $5^\circ$  gemittelte phasenabhängige Messsignal  $\bar{S}(\beta, \varphi_{rel})$  für jeden Winkel  $\beta$  jeweils eine Kosinus-Funktion angepasst. Die Phase der Anpassung entspricht der Phase-der-Phase  $\bar{\phi}_1(\beta)$  und wird in (d), (f) und (h) dargestellt. Das 95 %-Konfidenzintervall der Phase der Anpassung ist in Form der Fehlerbalken gegeben. Die

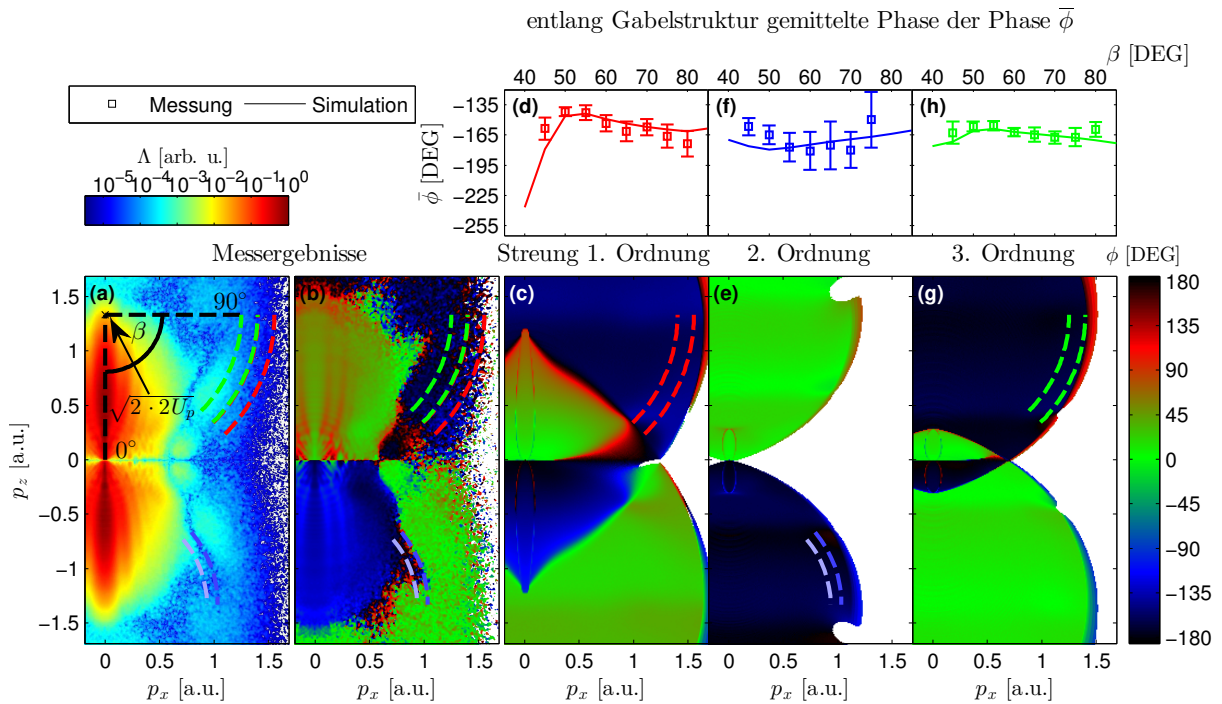


Abbildung 6.6.1: Amplitude  $\Lambda_1(p_x, p_z)$  (a) und Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  (b) der Xenon-Messdaten. Die durch gestrichelte Linien begrenzten Ringsegmente umschließen einzelne Zinken der Gabelstruktur, die verschiedenen Streuordnungen zugeordnet werden können. Die Ringsegmente sind um den  $2U_p$ -Grenzwert zentriert, der Winkel  $\beta$  parametrisiert die Position auf jedem Ringsegment. Semiklassische Berechnungen der Phase  $\phi_1(p_x, p_z)$  der zu den Zinken gehörigen Streuordnungen sind in (c), (e) und (g) dargestellt. Durch Anpassung einer Kosinus-Funktion an das über einem  $5^\circ$  Bereich gemittelte Signal  $\bar{S}(\beta, \varphi_{rel})$  ergeben sich die in (d), (f), (h) gezeigten Phasenverläufe. Die Fehlerbalken entsprechen dem 95 %-Konfidenzintervall der Kosinus-Anpassung.

Genauigkeit der gemessenen Phase liegt für die Streuung erster und dritter Ordnung bei etwa  $\pm 10^\circ$ , für die Streuung zweiter Ordnung bei etwa  $\pm 20^\circ$ . Ursache für den erhöhten Fehler ist, dass im Bereich der Streuung zweiter Ordnung auch Beiträge der Streuung erster und dritter Ordnung auffindbar sind, welche eine etwa  $180^\circ$  verschobene Phasenabhängigkeit aufweisen (vergleiche (e) und (g)). Dies führt zu einer schwächeren Phasenabhängigkeit des Messsignals. Die aus der Simulation ( $I_\omega = 4 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $\epsilon = 0.1$ ) ermittelten Phasenverläufe für verschiedene Streuordnungen (durchgezogene Linien) zeigen eine bemerkenswerte gute Übereinstimmung mit den Messdaten.

In Abbildung 6.6.2 werden die Messdaten mit semiklassischen Simulationen für  $\epsilon = 0.1$  und  $\epsilon = 0.01$  (durchgezogene Linien,  $\epsilon$ ) verglichen. Um ein besseres Verständnis für die verantwortlichen Effekte zu geben, werden außerdem Simulationen gezeigt, in denen nur die Ionisationswahrscheinlichkeiten (gestrichelte Linien,  $\epsilon_{ion}$ ) bzw. nur die Elektronentrajektorien (gepunktete Linien,  $\epsilon_{tr,j}$ ) durch das Zwei-Farben-Feld moduliert werden. Die jeweiligen Linien sind für beide  $\epsilon$ -Werte 0.1 und 0.01 nahezu identisch.

Wie anhand der Betrachtungen in Abbildung 6.5.4 zu erwarten ist, ist der Einfluss der Trajektorienänderung auf den Phasenverlauf geringer als der der Ionisationswahrscheinlichkeit. Daher folgt der Phasenverlauf der Messdaten sowie der vollständigen Simulation ( $\epsilon$ ) annähernd dem Phasenverlauf, der sich aus der Modulation der Ionisationswahrscheinlichkeit ( $\epsilon_{ion}$ ) ergibt. Die

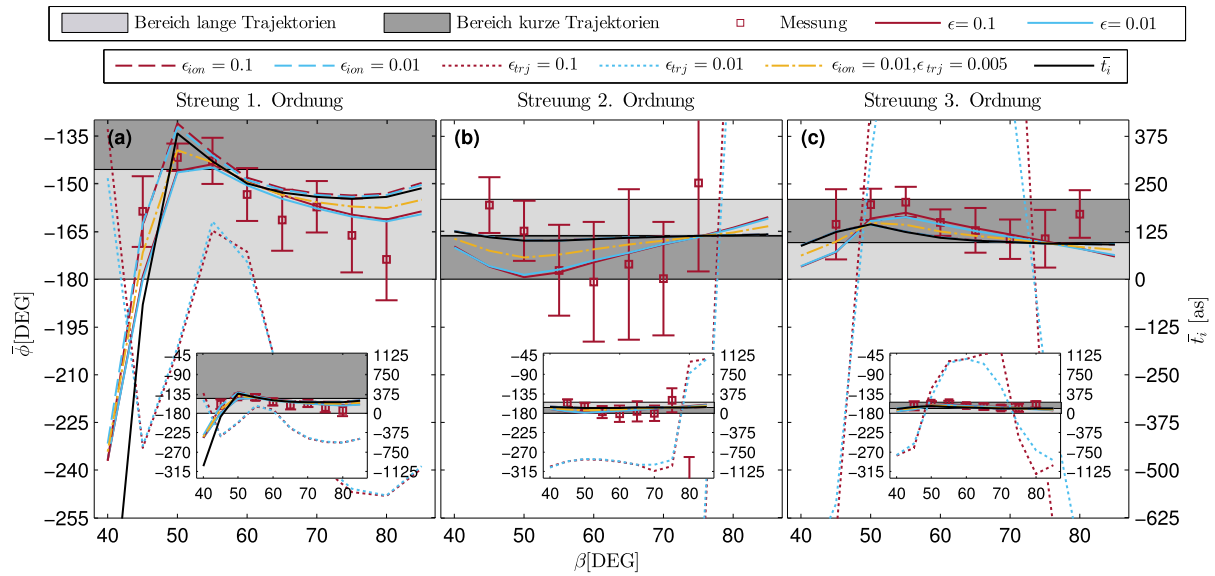


Abbildung 6.6.2: Phasenverlauf entlang der Zinken der Gabelstruktur für die Streuung erster Ordnung (a), zweiter Ordnung (b) und dritter Ordnung (c). Die eingefügten Abbildungen zeigen dieselben Daten über einen größeren Bereich der senkrechten Achse. Quadrate: Messdaten entsprechend Abbildung 6.6.1. Linien: Ergebnisse der semiklassischen Simulation für  $\epsilon = 0.1$  bzw.  $\epsilon = 0.01$ . Die Störung durch das  $2\omega$ -Feld wird auf verschiedene Weisen berücksichtigt. Das schwache  $2\omega$ -Feld moduliert sowohl die Ionisationswahrscheinlichkeit als auch die Elektronentrajektorien (durchgezogene Linien,  $\epsilon$ ), nur die Ionisationswahrscheinlichkeit (gestrichelte Linien,  $\epsilon_{ion}$ ) bzw. nur die Elektronentrajektorien (gepunktete Linien,  $\epsilon_{tr,j}$ ). Orangene Linie: Die Ionisationswahrscheinlichkeit wird mit  $\epsilon_{ion} = 0.01$  und die Elektronentrajektorien mit  $\epsilon_{tr,j} = 0.005$  moduliert. Schwarze Linie: Mittlere Ionisationszeit  $\bar{t}_i$ , die aus einer semiklassischen Simulation mit  $\epsilon = 0$  gewonnen wird.

Abweichungen  $\Delta\phi$  zwischen beiden Phasenverläufen liegen in einem Bereich von  $0^\circ$  bis  $15^\circ$ , wobei die mittlere Abweichung  $\Delta\bar{\phi} \approx 5^\circ$  im erwarteten Bereich  $0 \leq \Delta\bar{\phi} \leq 10^\circ$  liegt. Der durch die Trajektorienänderung induzierte Phasenverlauf (gepunktete Linien,  $\epsilon_{trj}$ ) zeigt dagegen einen gänzlich anderen Verlauf, der einen deutlich größeren Phasenbereich abdeckt, wie in den eingefügten Abbildungen erkennbar ist.

Wird der Einfluss des  $2\omega$ -Feld auf die Trajektorienänderung in der Simulation künstlich reduziert (gelbe Linie,  $\epsilon_{ion} = 0.01$  und  $\epsilon_{trj} = 0.005$ ), ergibt sich ein Phasenverlauf, der zwischen den beiden Extremfällen  $\epsilon = 0.01$  (entspricht  $\epsilon_{ion} = 0.01$  und  $\epsilon_{trj} = 0.01$ ) und  $\epsilon_{ion} = 0.01$  ( $\epsilon_{ion} = 0.01$  und  $\epsilon_{trj} = 0$ ) liegt. Dies bestätigt, dass die Abweichung  $\Delta\phi$  auf die Modifikation der Elektronentrajektorien zurückzuführen ist.

Mithilfe von Gleichung 6.4.5 ( $\phi_1 = 2\omega t_i - \pi$ ) können die Phasenwerte in Ionisationszeiten umgerechnet werden, wodurch sich die Zeitachse am rechten Rand der Abbildung 6.6.2 ergibt. Dabei entspricht  $t_i = 0$  als einem lokalen Maximum des absoluten elektrischen Feldes  $|\mathbf{E}(t)|$ . Positive Zeiten entsprechen einer mittleren Ionisationszeit nach dem Maximum, negative Zeiten einer Zeit vor dem Maximum. Die so ermittelten Ionisationszeiten entsprechen der mittleren Ionisationszeit  $\bar{t}_i$  aller unter dem jeweiligen Winkel beitragenden Trajektorien die mit ihrer Ionisations- und Streuwahrscheinlichkeit gewichtet werden. Alternativ können die mittleren Ionisationszeiten  $\bar{t}_i$  auch direkt aus der semiklassischen Simulation extrahiert werden. Diese Zeiten sind für eine Simulation ohne  $2\omega$ -Feld ( $\epsilon = 0$ ) als schwarze Linien dargestellt und stimmen mit den Simulationen, in denen nur die Ionisationswahrscheinlichkeit moduliert wird (gestrichelten Linien,  $\epsilon_{ion}$ ), sehr gut überein.

Der für jede Streuordnung mögliche Bereich der Ionisationszeiten (siehe Abb. 3.5.2) ist in den Abbildungen in grau unterlegt, wobei zwischen den Zeiten langer und kurzer Trajektorien unterschieden wird. Die Daten liegen fast vollständig in den dargestellten Bereichen. Für Streuungen erster Ordnung (a) liegen die mittleren Ionisationszeiten  $\bar{t}_i$  (schwarze Linie) hauptsächlich im Bereich der langen Trajektorien. Dies ist nicht verwunderlich, da die langen Trajektorien für eine Streuung erster Ordnung eine deutlich höhere Ionisationswahrscheinlichkeit haben und daher die Verteilung dominieren (siehe Abb. 6.4.2). Die kurzen Trajektorien werden nur unter  $\beta \approx 50^\circ$  dominant. Grund dafür ist, dass die Streuverteilung der langen Trajektorien im Bereich dieses Winkels ein Minimum im differentiellen Wirkungsquerschnitt aufweist. Daher können die kurzen Trajektorien in diesem Bereich einen dominanten Einfluss auf die Verteilung haben.

Für die Streuungen höherer Ordnung ((b) und (c)) ist der Bereich der erlaubten Ionisationszeiten deutlich schmaler. Daher sind auch die Unterschiede in der Ionisationswahrscheinlichkeit langer und kurzer Trajektorien geringer, weshalb die mittlere Ionisationszeit in etwa in der Mitte des erlaubten Bereichs liegt. Die Messergebnisse und die Simulation mit vollständiger Berücksichtigung des  $2\omega$ -Feldes (durchgezogene Linien) liegen jedoch aufgrund des Einflusses der Trajektorienänderung deutlich im Bereich der kurzen Trajektorien, wodurch der falsche Eindruck einer Dominanz der kurzen Trajektorien suggeriert wird. Abschließend lässt sich festhalten, dass die mittleren Ionisationszeiten im Bereich der Gabelstruktur recht genau ermittelt werden konnten. Der Vergleich mit Simulationsdaten zeigt, dass die Modifikation der Elektronentrajektorien bei der Rekonstruktion der Ionisationszeiten im Mittel eine systematische Abweichung von 40 as induziert. Die Messgenauigkeit aufgrund der Fehlerbalken liegt bei etwa  $\pm 100$  as.

## 7 Zusammenfassung und Ausblick

Das Ziel dieser Arbeit war es, mithilfe von Zwei-Farben-Feldern die Ionisations- und Streudynamik von Photoelektronen zu untersuchen. Dazu wurden mit einem VMI-Spektrometer die phasenabhängigen Photoelektronenimpulsverteilungen von Edelgasen in orthogonalen und parallelen Zwei-Farben-Feldern gemessen. Um auch Elektronen mit hoher Energie, wie sie bei der Ionisation mit langen Wellenlängen beobachtet werden, messen zu können, wurde in dieser Arbeit basierend auf dem Design in [2] ein Hochenergie-VMI-Spektrometer entwickelt, mit dem Energien bis zu 320 eV detektiert werden können. Der Versuchsaufbau, das VMI-Spektrometer und die Messmethoden werden dazu in Kapitel 4 ausführlich erläutert.

Die auf diese Weise gemessenen Photoelektronenimpulsverteilungen wurden mit der Methode der Phase-der-Phase-Analyse [1] untersucht, um die Abhängigkeit von der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  zu studieren. Die dabei gewonnene Phasenabhängigkeit wurde mit den Ergebnissen einer erweiterten semiklassischen Simulation (Kapitel 3) verglichen. Diese dreidimensionale Simulation kann für beliebig polarisierte Laserfelder durchgeführt werden und berücksichtigt dabei auch Streuereignisse höherer Ordnung. Die Simulation bietet zudem die Möglichkeit, verschiedene Klassen von Photoelektronen (d. h. direkte und gestreute Elektronen) getrennt voneinander zu untersuchen, welche zur Analyse der zugrunde liegenden Dynamiken genutzt wurde.

Im Gegensatz zu bisherigen in der Literatur üblichen Messungen mit orthogonalen Zwei-Farben-Feldern wurde in den Untersuchungen in Kapitel 5 eine ungewöhnliche Ausrichtung der Feldpolarisationen ausgewählt, bei der das ionisierende  $\omega$ -Feld senkrecht zur Oberfläche des bildgebenden Detektors ausgerichtet wird. Dadurch kann die phasenabhängige Auslenkung der Photoelektronenspektren aufgrund des  $2\omega$ -Feldes direkt auf den Detektor abgebildet werden. Im Vergleich zu üblichen Messungen mit einem VMI-Spektrometer können auf diese Weise außerdem Elektronen mit annähernd dreimal höherer Energie detektiert werden.

Die Untersuchungen der Phasenabhängigkeit der Photoelektronenspektren von Neon und Xenon mit der Phase-der-Phase-Analyse zeigen einen deutlichen Phasenunterschied zwischen gestreuten und direkten Elektronen. Zudem wird eine starke Abhängigkeit von den verwendeten Zielatomen (Neon und Xenon) beobachtet. Die erweiterte semiklassische Simulation zeigt für Neon eine gute qualitative Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen sowie der Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung. Für Xenon hingegen können trotz qualitativer Übereinstimmung der generellen Phasenabhängigkeit mit beiden Simulationen nicht alle Strukturen der gemessenen Spektren reproduziert werden.

Die Abweichungen zur Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung können dabei auf Probleme mit der Form der in der Literatur etablierten Potentiale hindeuten. Ebenso kann die Vernachlässigung von Mehrelektroneneffekten oder die Modifikation des Potentials für kleine Radien Probleme bereiten. Hier stellt sich die Frage, ob in der Einzelelektronennäherung ein

zufriedenstellendes Potenzial existiert. Ein möglicher Ansatzpunkt, die Ergebnisse des semiklassischen Modells zu verbessern, ist die Verwendung von numerisch ermittelten differentiellen Wirkungsquerschnitten, die für das jeweilige Potenzial des Zielatoms berechnet werden und in den Untersuchungen in Kapitel 6 bereits Anwendung finden.

In Kapitel 6 wurden erstmals parallele Zwei-Farben-Felder im kurzwelligen Infrarotregime ( $\lambda_\omega = 1800$  nm und  $\lambda_{2\omega} = 900$  nm) verwendet, um mit einem VMI-Spektrometer die phasenabhängigen winkelaufgelösten Photoelektronenimpulsverteilungen von Xenon zu messen. Dabei wurde das von der relativen Phase  $\varphi_{rel}$  abhängige Signal der Gabelstruktur mittels einer Phase-der-Phase-Analyse untersucht und ebenfalls mit den Ergebnissen der erweiterten dreidimensionalen semiklassischen Simulation verglichen.

Hierbei konnte eine ausgezeichnete qualitative und quantitative Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation erreicht werden. Eine mittels des semiklassischen Modells vorgenommene Entfaltung der Beiträge, die das Photoelektronensignal modulieren, zeigt, dass die Modifikation der Ionisationswahrscheinlichkeit durch das  $2\omega$ -Feld das Messsignal mit Amplitude  $\Lambda_{ion}$  moduliert und den dominanten Beitrag zu der Phasenabhängigkeit des Messsignals leistet. Die Phase  $\phi_{ion}$  dieser Modulation enthält dabei Informationen über die gewichtete mittlere Ionisationszeit  $\bar{t}_i = -\phi_{ion}/2\omega$  der beitragenden Trajektorien, wobei die Gewichtung der Trajektorien entsprechend ihrer jeweiligen Ionisationswahrscheinlichkeit stattfindet.

Die Phase  $\phi_{ion}$  kann jedoch nicht direkt gemessen werden, da neben der Modifikation der Ionisationswahrscheinlichkeit auch noch eine periodische Beeinflussung der Elektronentrajektorien auftritt, durch welche das Messsignal zusätzlich mit Phase  $\phi_{trj}$  und Amplitude  $\Lambda_{trj}$  moduliert wird. Beide Modulationen addieren sich entsprechend des harmonischen Additionstheorems, daher kann nur eine gesamte Phase  $\phi_{ges}$  rekonstruiert werden. Die Abweichung  $\Delta\phi = |\phi_{ges} - \phi_{ion}|$  hängt dabei insbesondere vom Amplitudenverhältnis  $\Lambda_{trj}/\Lambda_{ion}$  beider Modulationen ab, welches für kleine Amplitudenverhältnisse  $\epsilon < 0.05$  ( $\epsilon = E_{2\omega}/E_\omega$ ) des Zwei-Farben-Feldes im Mittel  $\Lambda_{trj}/\Lambda_{ion} = 0.17$  ergibt. Es wurde gezeigt, dass dies eine systematische Abweichung von bis zu  $\Delta\phi = 10^\circ$  verursachen kann, was einer Zeitverschiebung von bis zu 80 as entspricht. Das Amplitudenverhältnis  $\Lambda_{trj}/\Lambda_{ion}$  verkleinert sich für größere Werte  $\epsilon > 0.05$ , wodurch auch die mögliche Zeitverschiebung verkleinert wird. Dabei sollte sich auf einen Bereich  $0.05 < \epsilon < 0.15$  beschränkt werden, um „Caustic“-Effekte [135, 136] zu vermeiden.

Abschließend ist festzuhalten, dass sowohl orthogonale als auch parallele Zwei-Farben-Felder einen ausgezeichneten Ansatz bieten, die Ionisations- und Streudynamiken von Photoelektronen zu untersuchen, insbesondere wenn in dedizierten Bereichen des Spektrums einzelne Beiträge der Elektronenverteilung dominieren. Dabei zeigen Elektronen unterschiedlichen Ursprungs deutlich differenzierbare Phasenabhängigkeiten und können daher leicht identifiziert werden. Die Rekonstruktion von Zeitinformationen wird dadurch limitiert, dass im Zwei-Farben-Feld sowohl die Ionisationswahrscheinlichkeit, als auch die Elektronentrajektorien mit unterschiedlicher Phase moduliert werden.

Die erreichbare Präzision hängt dabei von dem Amplitudenverhältnis  $\Lambda_{trj}/\Lambda_{ion}$  dieser beiden Modulationen ab.

Im Ausblick auf künftige Experimente ist besonders die hohe Sensibilität der Phasenabhängigkeit auf den Ursprung der Photoelektronen bzw. kleine Änderungen in der Elektronendynamik von

Bedeutung. Zum Beispiel kann die Phasenabhängigkeit von komplexen Molekülen (wie C60) auf Unterschiede zu der Phasenabhängigkeit atomarer Spektren untersucht werden. Ebenfalls von Interesse sind weitere Analysen der Wellenlängenabhängigkeiten. Zu diesem Zweck befindet sich ein weiteres Zwei-Farben-Setup ( $\lambda_\omega = 3.2 \mu\text{m}$ ,  $\lambda_{2\omega} = 1.6 \mu\text{m}$ ) in Vorbereitung. Zur Verbesserung der semiklassischen Simulation wird eine Berücksichtigung der klassischen Wirkung angestrebt, damit auch die Phasenabhängigkeiten von Interferenzstrukturen untersucht werden können.

# Literaturverzeichnis

- [1] S. Skruszewicz, J. Tiggesbäumker, K.-H. Meiwes-Broer, M. Arbeiter, T. Fennel, and D. Bauer, *Physical Review Letters* **115**, 043001 (2015).
- [2] N. G. Kling, D. Paul, A. Gura, G. Laurent, S. De, H. Li, Z. Wang, B. Ahn, C. H. Kim, T. K. Kim, I. V. Litvinyuk, C. L. Cocke, I. Ben-Itzhak, D. Kim, and M. F. Kling, *Journal of Instrumentation* **9**, P05005 (2014).
- [3] M. Möller, F. Meyer, A. M. Sayler, G. G. Paulus, M. F. Kling, B. E. Schmidt, W. Becker, and D. B. Milošević, *Physical Review A* **90**, 023412 (2014).
- [4] T. H. Maiman, *Nature* **187**, 493 (1960).
- [5] P. Moulton, *Optics News* **8**, 9 (1982).
- [6] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, *Optics Letters* **16**, 42 (1991).
- [7] D. Strickland and G. Mourou, *Optics Communications* **55**, 447 (1985).
- [8] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, and G. Mourou, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **24**, 398 (1988).
- [9] A. Dubietis, G. Jonušauskas, and A. Piskarskas, *Optics Communications* **88**, 437 (1992).
- [10] I. Ross, P. Matousek, M. Towrie, A. Langley, and J. Collier, *Optics Communications* **144**, 125 (1997).
- [11] G. Cerullo and S. De Silvestri, *Review of Scientific Instruments* **74**, 1 (2003).
- [12] G. S. Voronov and N. B. Delone, *Sov. Phys. JETP* **23**, 54 (1965).
- [13] P. Agostini, G. Barjot, J. Bonnal, G. Mainfray, C. Manus, and J. Morellec, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **4**, 667 (1968).
- [14] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N. K. Rahman, *Physical Review Letters* **42**, 1127 (1979).
- [15] L. V. Keldysh, *Soviet Physics JETP* **20**, 1307 (1965).
- [16] S. Augst, D. D. Meyerhofer, D. Strickland, and S. L. Chint, *Journal of the Optical Society of America B* **8**, 858 (1991).
- [17] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **21** (1988).
- [18] A. L'Huillier, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, *Physical Review Letters* **48**, 1814 (1982).
- [19] A. L'Huillier, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, *Physical Review A* **27**, 2503 (1983).
- [20] G. G. Paulus, W. Nicklich, H. Xu, P. Lambropoulos, and H. Walther, *Physical Review Letters* **72**, 2851 (1994).



- [21] C. I. Blaga, F. Catoire, P. Colosimo, G. G. Paulus, H. G. Muller, P. Agostini, and L. F. DiMauro, *Nature Physics* **5**, 335 (2009).
- [22] W. Quan, Z. Lin, M. Wu, H. Kang, H. Liu, X. Liu, J. Chen, J. Liu, X. T. He, S. G. Chen, H. Xiong, L. Guo, H. Xu, Y. Fu, Y. Cheng, and Z. Z. Xu, *Physical Review Letters* **103**, 093001 (2009).
- [23] M. B. Gaarde, K. J. Schafer, K. C. Kulander, B. Sheehy, D. Kim, and L. F. DiMauro, *Physical Review Letters* **84**, 2822 (2000).
- [24] Y. Huismans et al., *Science (New York, N.Y.)* **331**, 61 (2011).
- [25] C. I. Blaga, J. Xu, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, K. Zhang, P. Agostini, T. A. Miller, L. F. DiMauro, and C. D. Lin, *Nature* **483**, 194 (2012).
- [26] Z. Chang, *Physical Review A* **70**, 043802 (2004).
- [27] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and M. Y. Ivanov, *Optics Letters* **19**, 1870 (1994).
- [28] D. Oron, Y. Silberberg, N. Dudovich, and D. M. Villeneuve, *Physical Review A* **72**, 063816 (2005).
- [29] I. J. Sola, E. Mével, L. Elouga, E. Constant, V. Strelkov, L. Poletto, P. Villoresi, E. Benedetti, J.-P. Caumes, S. Stagira, C. Vozzi, G. Sansone, and M. Nisoli, *Nature Physics* **2**, 319 (2006).
- [30] G. G. Paulus, F. Lindner, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, M. Lezius, and F. Krausz, *Physical Review Letters* **91**, 253004 (2003).
- [31] D. B. Milošević, G. G. Paulus, D. Bauer, and W. Becker, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **39**, R203 (2006).
- [32] T. Rathje, A. M. Sayler, S. Zeng, P. Wustelt, H. Figger, B. D. Esry, and G. G. Paulus, *Physical Review Letters* **111**, 093002 (2013).
- [33] H. G. Muller, H. B. v. L. van den Heuvel, and M. J. van der Wiel, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **19**, L733 (1986).
- [34] G. G. Paulus, W. Becker, and H. Walther, *Physical Review A* **52**, 4043 (1995).
- [35] H. G. Muller, P. H. Bucksbaum, D. W. Schumacher, and A. Zavriyev, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **23**, 2761 (1990).
- [36] C. Figueira de Morisson Faria, D. B. Milošević, and G. G. Paulus, *Physical Review A* **61**, 063415 (2000).
- [37] M. Kitzler and M. Lezius, *Physical Review Letters* **95**, 253001 (2005).
- [38] M. Kitzler, K. O’Keeffe, and M. Lezius, *Journal of Modern Optics* **53**, 57 (2006).
- [39] D. Shafir, H. Soifer, B. D. Bruner, M. Dagan, Y. Mairesse, S. Patchkovskii, M. Y. Ivanov, O. Smirnova, and N. Dudovich, *Nature* **485**, 343 (2012).
- [40] X. Xie, S. Roither, D. Kartashov, E. Persson, D. G. Arbó, L. Zhang, S. Gräfe, M. S. Schöffler, J. Burgdörfer, A. Baltuška, and M. Kitzler, *Physical Review Letters* **108**, 193004 (2012).
- [41] J. Henkel and M. Lein, *Physical Review A* **92**, 013422 (2015).
- [42] M. Richter, M. Kunitski, M. Schöffler, T. Jahnke, L. P. H. Schmidt, and R. Dörner, *Physical Review A* **94**, 033416 (2016).

- [43] M. Förster, T. Paschen, M. Krüger, C. Lemell, G. Wachter, F. Libisch, T. Madlener, J. Burgdörfer, and P. Hommelhoff, *Physical Review Letters* **117**, 217601 (2016).
- [44] N. Eicke and M. Lein, *Journal of Modern Optics* **64**, 981 (2017).
- [45] L. Zhang, X. Xie, S. Roither, Y. Zhou, P. Lu, D. Kartashov, M. Schöffler, D. Shafir, P. B. Corkum, A. Baltuška, A. Staudte, and M. Kitzler, *Physical Review Letters* **112**, 193002 (2014).
- [46] M. Richter, M. Kunitski, M. Schöffler, T. Jahnke, L. P. Schmidt, M. Li, Y. Liu, and R. Dörner, *Physical Review Letters* **114**, 143001 (2015).
- [47] G. Porat, G. Alon, S. Rozen, O. Pedatzur, M. Krüger, D. Azoury, A. Natan, G. Orenstein, B. D. Bruner, M. J. J. Vrakking, and N. Dudovich, *Nature Communications* **9**, 2805 (2018).
- [48] G. Mainfray and G. Manus, *Reports on Progress in Physics* **54**, 1333 (1991).
- [49] R. Shakeshaft, R. M. Potvliege, M. Dörr, and W. E. Cooke, *Physical Review A* **42**, 1656 (1990).
- [50] P. Mulser and D. Bauer, *Springer Tracts in Modern Physics* **238** (2010).
- [51] H. B. van Linden van den Heuvell and H. G. Muller, *Multiphoton Processes*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1988.
- [52] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and F. Brunel, *Physical Review Letters* **62**, 1259 (1989).
- [53] W. Becker, A. Lohr, and M. Kleber, *Quantum and Semiclassical Optics: Journal of the European Optical Society Part B* **7**, 423 (1995).
- [54] G. Wentzel, *Zeitschrift für Physik* **38**, 518 (1926).
- [55] H. A. Kramers, *Zeitschrift für Physik* **39**, 828 (1926).
- [56] L. Brillouin, *Comptes Rendus de l'Academie des Sciences* , 24 (1926).
- [57] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Course of Theoretical Physics - Vol 3 Quantum Mechanics - nonrelativistic theory 2nd ed*, Oxford, 1965.
- [58] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov, *Sov Phys JETP* **64**, 1191 (1986).
- [59] N. B. Delone and V. P. Krainov, *Journal of the Optical Society of America B* **8**, 1207 (1991).
- [60] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent 'ev, *Journal of Experimental and Theoretical Physics* **23**, 1393 (1966).
- [61] F. A. Ilkov, J. E. Decker, and S. L. Chin, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **25**, 4005 (1992).
- [62] M. Li, J.-W. Geng, M. Han, M.-M. Liu, L.-Y. Peng, Q. Gong, and Y. Liu, *Physical Review A* **93**, 013402 (2016).
- [63] O. I. Tolstikhin, T. Morishita, and L. B. Madsen, *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* **84**, 1 (2011).
- [64] X. M. Tong and C. D. Lin, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **38**, 2593 (2005).
- [65] A. A. Radzig and B. M. Smirnov, *Reference Data on Atoms, Molecules, and Ions*, Springer Berlin Heidelberg, 1985.

- [66] V. S. Popov, *Physics-Uspekhi* **47**, 855 (2004).
- [67] T. K. Kjeldsen and L. B. Madsen, *Physical Review A* **71**, 023411 (2005).
- [68] M. Y. Ivanov, M. Spanner, and O. Smirnova, *Journal of Modern Optics* **52**, 165 (2005).
- [69] L. Arissian, C. Smeenk, F. Turner, C. Trallero, A. V. Sokolov, D. M. Villeneuve, A. Staudte, and P. B. Corkum, *Physical Review Letters* **105**, 133002 (2010).
- [70] M. Möller, Y. Cheng, S. D. Khan, B. Zhao, K. Zhao, M. Chini, G. G. Paulus, and Z. Chang, *Physical Review A* **86**, 011401 (2012).
- [71] D. Würzler, N. Eicke, M. Möller, D. Seipt, A. M. Sayler, S. Fritzsche, M. Lein, and G. G. Paulus, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **51**, 015001 (2018).
- [72] J. D. Jackson, *Klassische Elektrodynamik*, De Gruyter, 2014.
- [73] H. R. Reiss, *Physical Review Letters* **101** (2008).
- [74] H. R. Reiss, *Physical Review A* **87**, 033421 (2013).
- [75] H. R. Reiss, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **47**, 204006 (2014).
- [76] A. Ludwig, J. Maurer, B. W. Mayer, C. R. Phillips, L. Gallmann, and U. Keller, *Physical Review Letters* **113**, 243001 (2014).
- [77] D. G. Arbó, S. Nagele, X.-M. Tong, X. Xie, M. Kitzler, and J. Burgdörfer, *Physical Review A* **89**, 043414 (2014).
- [78] W. Becker, F. Grasbon, R. Kopold, D. B. Milošević, G. G. Paulus, and H. Walther, *Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics* **48**, 35 (2002).
- [79] K. Varjú, P. Johnsson, R. López-Martens, T. Remetter, E. Gustafsson, J. Mauritsson, M. B. Gaarde, K. J. Schafer, C. Erny, I. Sola, A. Zair, E. Constant, E. Cormier, E. Mével, and A. L’Huillier, *Laser physics.*, volume 15, MAIK Nauka/Interperiodica, 2005.
- [80] F. Krausz and M. Ivanov, *Reviews of Modern Physics* **81**, 163 (2009).
- [81] P. Corkum and F. Krausz, *Nature Physics* **3**, 381 (2007).
- [82] D. N. Fittinghoff, P. R. Bolton, B. Chang, and K. C. Kulander, *Physical Review Letters* **69**, 2642 (1992).
- [83] G. G. Paulus, W. Becker, W. Nicklich, and H. Walther, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **27**, L703 (1994).
- [84] S. Larochelle, A. Talebpour, and S. L. Chin, *Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics* **31**, 1201 (1998).
- [85] Z. Chen, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **44**, 245601 (2011).
- [86] F. Salvat, NIST Electron Elastic-Scattering Cross-Section Database: Version 3.2.
- [87] K. Ohya and I. Mori, *Japanese Journal of Applied Physics* **29**, 2145 (1990).
- [88] C. J. C. J. Joachain, *Quantum collision theory*, North-Holland, 1983.
- [89] A. Čerkić, E. Hasović, D. B. Milošević, and W. Becker, *Physical Review A* **79**, 033413 (2009).
- [90] D. Zille, *Scaling Ultrashort Light-Matter-Interaction to the Short-Wave Infrared Regime and Beyond*, Doctoral thesis, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2018.

- [91] M. Okunishi, T. Morishita, G. Prümper, K. Shimada, C. D. Lin, S. Watanabe, and K. Ueda, *Physical Review Letters* **100**, 143001 (2008).
- [92] Z. Chang, *Fundamentals of Attosecond Optics*, CRC Press, Boca Raton, 1st edition, 2011.
- [93] C. Iaconis and I. A. Walmsley, *Optics Letters* **23**, 792 (1998).
- [94] I. A. Walmsley, *Few-Cycle Laser Pulse Generation and Its Applications* **292**, 265 (2004).
- [95] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L’Huillier, and P. B. Corkum, *Physical Review A* **49**, 2117 (1994).
- [96] A. L’Huillier, M. Lewenstein, P. Salières, P. Balcou, M. Y. Ivanov, J. Larsson, and C. G. Wahlström, *Physical Review A* **48**, R3433 (1993).
- [97] M. Möller, *Probing Strong-field Photoionization of Atoms and Diatomic Molecules with Short-wave Infrared Radiation*, Doctoral thesis, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2017.
- [98] C. D. Lin and J. Xu, *Imaging ultrafast dynamics of molecules with laser-induced electron diffraction*, 2012.
- [99] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, and B. P. Flannery, *Numerical recipes : the art of scientific computing*, Cambridge University Press, 2007.
- [100] A. Messiah and J. Streubel, *Quantenmechanik Band 1*, Walter de Gruyter, 1991.
- [101] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, C. Spielmann, and P. Tournois, *Optics Letters* **25**, 575 (2000).
- [102] R. R. Alfano, Q. X. Li, T. Jimbo, J. T. Manassah, and P. P. Ho, *Optics Letters* **11**, 626 (1986).
- [103] A. Brodeur and S. L. Chin, *Journal of the Optical Society of America B* **16**, 637 (1999).
- [104] D. Ray, Z. Chen, S. De, W. Cao, I. V. Litvinyuk, A. T. Le, C. D. Lin, M. F. Kling, and C. L. Cocke, *Physical Review A* **83**, 013410 (2011).
- [105] R. W. Boyd, *Nonlinear optics*, Academic Press, 2008.
- [106] M. Polyanskiy, [refractiveindex.info](http://refractiveindex.info), 2018.
- [107] D. W. Chandler and P. L. Houston, *The Journal of Chemical Physics* **87**, 1445 (1987).
- [108] A. T. Eppink and D. H. Parker, *Review of Scientific Instruments* **68**, 3477 (1997).
- [109] B. J. Whitaker, *Imaging in molecular dynamics : technology and applications : a user’s guide*, Cambridge University Press, 2003.
- [110] J. Ladislav Wiza, *Nuclear Instruments and Methods* **162**, 587 (1979).
- [111] I. M. Ismail, M. Barat, J.-C. Brenot, J. A. Fayeton, V. Lepère, and Y. J. Picard, *Review of Scientific Instruments* **76**, 043304 (2005).
- [112] A. Nomerotski, M. Brouard, E. Campbell, A. Clark, J. Crooks, J. Fopma, J. J. John, A. J. Johnsen, C. Slater, R. Turchetta, C. Vallance, E. Wilman, and W. H. Yuen, *Journal of Instrumentation* **5**, C07007 (2010).
- [113] M. Fisher-Levine and A. Nomerotski, *Journal of Instrumentation* **11**, C03016 (2016).
- [114] C. R. Gebhardt, T. P. Rakitzis, P. C. Samartzis, V. Ladopoulos, and T. N. Kitsopoulos, *Review of Scientific Instruments* **72**, 3848 (2001).
- [115] J. J. Lin, J. Zhou, W. Shiu, and K. Liu, *Review of Scientific Instruments* **74**, 2495 (2003).

- [116] D. Townsend, M. P. Minitti, and A. G. Suits, *Review of Scientific Instruments* **74**, 2530 (2003).
- [117] A. C. Kak and M. Slaney, *Principles of Computerized Tomographic Imaging*, IEEE Press, 1998.
- [118] M. Wollenhaupt, M. Krug, J. Köhler, T. Bayer, C. Sarpe-Tudoran, and T. Baumert, *Applied Physics B* **95**, 647 (2009).
- [119] C. Smeenk, L. Arissian, A. Staudte, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **42**, 185402 (2009).
- [120] L. Montgomery Smith, D. R. Keefer, and S. Sudharsanan, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **39**, 367 (1988).
- [121] C. J. Dasch, *Applied Optics* **31**, 1146 (1992).
- [122] C. Bordas, F. Paulig, H. Helm, and D. L. Huestis, *Review of Scientific Instruments* **67**, 2257 (1998).
- [123] M. J. J. Vrakking, *Review of Scientific Instruments* **72**, 4084 (2001).
- [124] V. Dribinski, A. Ossadtchi, V. A. Mandelshtam, and H. Reisler, *Review of Scientific Instruments* **73**, 2634 (2002).
- [125] M. Kübel, *Photoionisation with Intense Laser Fields*, Diplomarbeit, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2010.
- [126] D. Irimia, D. Dobrikov, R. Kortekaas, H. Voet, D. A. van den Ende, W. A. Groen, and M. H. M. Janssen, *Review of Scientific Instruments* **80**, 113303 (2009).
- [127] M. Lein, E. K. U. Gross, and V. Engel, *Physical Review Letters* **85**, 4707 (2000).
- [128] N. Troullier and J. L. Martins, *Physical Review B* **43**, 1993 (1991).
- [129] P. Colosimo, G. Doumy, C. I. Blaga, J. Wheeler, C. Hauri, F. Catoire, J. Tate, R. Chirila, A. M. March, G. G. Paulus, H. G. Muller, P. Agostini, and L. F. DiMauro, *Nature Physics* **4**, 386 (2008).
- [130] Y. Zhang, P. Kellner, D. Adolph, D. Zille, P. Wustelt, D. Würzler, S. Skruszewicz, M. Möller, A. Max Sayler, and G. G. Paulus, *Optics Letters* **42**, 5150 (2017).
- [131] X.-B. Bian, Y. Huismans, O. Smirnova, K.-J. Yuan, M. J. J. Vrakking, and A. D. Bandrauk, *Physical Review A* **84**, 043420 (2011).
- [132] D. D. Hickstein, P. Ranitovic, S. Witte, X.-M. Tong, Y. Huismans, P. Arpin, X. Zhou, K. E. Keister, C. W. Hogle, B. Zhang, C. Ding, P. Johnsson, N. Toshima, M. J. J. Vrakking, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Physical Review Letters* **109**, 073004 (2012).
- [133] O. Pedatzur, G. Orenstein, V. Serbinnenko, H. Soifer, B. D. Bruner, A. J. Uzan, D. S. Brambila, A. Harvey, L. Torlina, F. Morales, O. Smirnova, and N. Dudovich, *Nature Physics* **11**, 815 (2015).
- [134] G. Porat, G. Alon, S. Rozen, O. Pedatzur, M. Krüger, D. Azoury, A. Natan, G. Orenstein, B. D. Bruner, M. J. J. Vrakking, and N. Dudovich, *Nature Communications* **9**, 2805 (2018).
- [135] O. Raz, O. Pedatzur, B. D. Bruner, and N. Dudovich, *Nature Photonics* **6**, 170 (2012).

- [136] D. Faccialà, S. Pabst, B. Bruner, A. Ciriolo, S. De Silvestri, M. Devetta, M. Negro, H. Soifer, S. Stagira, N. Dudovich, and C. Vozzi, *Physical Review Letters* **117**, 093902 (2016).
- [137] L. Seiffert, T. Paschen, P. Hommelhoff, and T. Fennel, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **51**, 134001 (2018).

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich herzlich bei all denjenigen bedanken, die mich während meines Studiums und der Promotion in fachlicher und persönlicher Weise unterstützt haben.

Besonderer Dank gilt dabei meinen Eltern Silke und Holger, die mir mein Studium ermöglicht und mich bei allen Vorhaben unterstützt haben, meiner Familie und meiner Freundin Anne, die mich in allen Phasen der Promotion immer motiviert und mir viel Kraft gegeben hat.

Insbesondere möchte ich Prof. Dr. Gerhard G. Paulus für die Gelegenheit danken, diese Arbeit in der Arbeitsgruppe Nichtlineare Optik durch führen zu können und für die Unterstützung meiner Promotion.

Slawomir Skruszewicz danke ich für die vielen gemeinsamen Messungen am VMI-Spektrometer und die wissenschaftlichen Anregungen und Diskussionen. Deine motivierende Art hat mir sehr geholfen, die vorliegenden Ergebnisse zu erzielen.

Danke an Nicolas Eicke und Prof. Dr. Manfred Lein für die ergiebige Kollaboration und die Unterstützung durch numerische Berechnungen der zeitabhängigen Schrödingergleichung.

Thanks to A. Max Sayler for his theoretical support, helpful discussions and the constructive suggestions.

Meinen Büro- und Laborkollegen Philipp Wustelt, Yinyue Zhang, Max Möller, Daniel Adolph und Danilo Zille danke ich für die tolle Zusammenarbeit im Labor, den hilfreichen Austausch von Ideen, die Unterstützung im Laserbetrieb und die angenehme Arbeitsatmosphäre.

Herzlichen Dank auch an Thomas Weber, der mir mit seiner technischen Fachkenntnis, der Wartung des Lasersystems, der Konstruktion von Bauteilen und den pünktlichen Aufrufen zum Mittagessen half, meine Ideen umzusetzen.

Hier möchte ich außerdem den Mitarbeitern der elektronischen- und mechanischen Werkstätten für die Beratung und die kompetente Fertigung der angefragten Geräte und Bauteile sowie der Verwaltung des Institutes für Optik und Quantenelektronik und des Helmholtz-Instituts für die reibungslosen Bestellvorgänge danken.

Danke auch an alle anderen Kollegen in der Arbeitsgruppe Nichtlineare Optik und am Institut für die nette Zusammenarbeit.

# Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Bei der Auswahl und Auswertung folgenden Materials haben mir die nachstehend aufgeführten Personen in der jeweils beschriebenen Weise unentgeltlich geholfen:

1. M. Sc. Nicolas Eicke führte im Rahmen einer Kollaboration mit der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Manfred Lein (Leibniz Universität Hannover) numerischen Berechnungen zur zeitabhängigen Schrödingergleichung durch. Diese Ergebnisse werden in Kapitel 5 im Vergleich mit eigenen Simulationen präsentiert.
2. M. Sc. Danilo Zille (Friedrich-Schiller-Universität Jena) stellte numerische berechnete differenzielle Wirkungsquerschnitte von Xenon zur Verfügung, die in den semiklassischen Simulationen in Kapitel 6 dieser Arbeit verwendet wurden.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Physikalischen-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt. Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

---

Ort, Datum

---

Unterschrift d. Verfassers