

# **Das Verhalten von atomarem Wasserstoff und Xenon in intensiven femtosekunden Laserpulsen**

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
der Fakultät für Physik  
der Universität Bielefeld

von

**Jürgen Gauer**

aus Bielefeld

2001

## **Inhaltsverzeichnis**

<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2. Grundlagen</b>	
2.1 Multiphotonenionisation	4
2.2 Above Threshold Ionisation	9
2.3 Durch den AC – Starkshift induzierte Resonanzen bei der Multiphotonenionisation in intensiven Laserpulsen	14
2.4 Multiphotonenionisation mit ultrakurzen, intensiven Laserpulsen	22
<b>3. Experiment</b>	
3.1 Die Vakuumapparatur	29
3.2 Das Lasersystem	38
3.3 Der elektronische Nachweis	43
<b>4. Meßdaten und Diskussion</b>	
<b>4.1 Die Winkelverteilung der Photoelektronen</b>	<b>46</b>
4.1.1 Der experimentelle Aufbau	50
4.1.2 Photoelektronenenergiespektrum und Winkelverteilung von Xenon für Laserpulse mit 610 nm und 305 nm	53
4.1.3 Photoelektronenenergiespektrum und Winkelverteilung von Wasserstoff für Laserpulse mit 610 nm und 305 nm	64

<b>4.2 Rydbergatome nach dem Multiphotonenprozeß</b>	79
4.2.1 Der experimentelle Aufbau	83
4.2.2 Der Nachweis von Rydbergatomen nach dem MPI-Prozeß am Xenon	86
4.2.3 Der Nachweis von Rydbergatomen nach dem MPI-Prozeß am atomaren Wasserstoff	93
<b>4.3 Die Phasenabhängige Bicolor-Multiphotonenionisation</b>	99
4.3.1 Der experimentelle Aufbau	104
4.3.2 Die Bestimmung des absoluten Phasenwinkels	110
4.3.3 Das phasenabhängige Bicolor-Elektronenspektrum von atomarem Wasserstoff	114
4.3.4 Das phasenabhängige Bicolor-Elektronenspektrum von Xenon	123
4.3.5 Das phasenabhängige Bicolor-Ionenspektrum von atomarem Wasserstoff und von Xenon	131
<b>5. Zusammenfassung</b>	135
<b>6. Literaturverzeichnis</b>	138

## 1 Einleitung

Die neueren Entwicklungen der Lasertechnik ermöglichen es, neue Fragestellungen auch experimentell zu untersuchen. In dieser Arbeit geht es um die Frage nach dem Verhalten von Atomen in einem starken elektromagnetischen Strahlungsfeld. Das Feld, das ein Elektron in einem Wasserstoffatom auf der ersten Bohrschen Bahn wahrnimmt, entspricht der atomaren Einheit der elektrischen Feldstärke, nämlich  $5,14 \times 10^{11} \text{Vm}^{-1}$ , der typischen Feldstärke eines Elektrons im Valenzorbital der meisten Atome. Wird nun ein Atom in ein äußeres Feld mit sehr hohen Feldstärken gebracht, so wird die Elektronenbewegung nicht mehr durch die atomare Attraktion des Kerns dominiert, sondern vielmehr gewinnt das äußere Feld mit zunehmender Feldstärke einen entscheidenden Einfluß.

Das Interesse gilt folglich der Wechselwirkung zwischen Materie und hochintensiver Laserstrahlung, die die optischen Eigenschaften der Materie verändert. Diese „Nichtlineare Optik“ schließt die Reaktion von Atomen auf elektromagnetische Strahlung ein, die eine drastische Veränderung der atomaren Struktur zur Folge hat. Es sind also neue Eigenschaften der Materie zu beschreiben, die das Resultat einer Wechselwirkung mit hoher Strahlungsintensität sind.

Eine Möglichkeit der Reaktion eines Atoms auf ein äußeres elektromagnetisches Feld ist seine Ionisation. Dieser Prozeß wird als **Multi Photon Ionisation**, **MPI**, bezeichnet, wenn mehr als ein Photon für die Ionisation benötigt wird. Der relativ zum Elektron sehr schwere Atomkern ist bei der Photonenabsorption für die Impulserhaltung unverzichtbar, während fast die gesamte kinetische Energie der Ionisationsprodukte vom Elektron aufgenommen wird.

Ein Rückblick auf die Entwicklung dieses Forschungsgebietes beginnt bei der theoretischen Voraussage von Goepfert-Mayer 1931 [GOE 31] über die Möglichkeit einer 2-Photonen-Ionisation. Der Wirkungsquerschnitt einer derartigen Reaktion ist allerdings außerordentlich klein, so daß eine sehr intensive Strahlungsquelle für diesen Prozeß erforderlich ist. Erste Experimente wurden mit Strahlung im Radiowellenbereich von Hugh und Grabner 1950 durchgeführt [GRA 50]. Mit der Entwicklung des Lasers Anfang der 60er Jahre wurde es dann möglich, ausreichend hohe Intensitäten für einen Mehrphotonenprozeß zu erzeugen, der zu einer Ionisation führen konnte. Kaiser und Garrett [KAI 61] wiesen eine 2-Photonenionisation am  $\text{CaF}_2$  nach und ein Jahr später, 1962, war es Abella [ABE 62], der eine 2-Photonenanregung des  $^9D^{3/2}$  Zustandes von Cäsium detektierte. Hall photoionisierte Jod mit einem 2-Photonenprozeß 1965 [HAL 65]. Die Photoionisation von Edelgasen gelang Voronov und Delone 1965 [VOR 65] mit dem Ergebnis, daß die Ionisationsrate mit  $\sigma_N I^N$  von der Intensität des Lasers abhängig ist ( $\sigma_N$ : generalisierter Wirkungsquerschnitt,  $I^N$ : Intensität, Index  $N$ : für N-Photonenübergang). Agostini et al. konnte 1968 [AGO 68] dieses Resultat verifizieren. Das Resümee dieser Forschungen ist die Bestätigung, daß es sich bei der Multiphotonenionisation um einen hoch nichtlinearen Prozeß handelt. Weitere Experimente

und Entwicklungen theoretischer Modelle folgten 1975 von Lecompte [LEC 75], 1979 von Zoller und Dixit [ZOL 79] und Lambropoulos et al. 1980 [DIX 80]. 1976 konnten von Martin und Mandel [MAR 76] zum erstenmal Elektronen statt Ionen detektiert werden. Diese Methode, angewandt von Agostini 1979 [AGO 79], führte zu der Entdeckung eines neuen, von der Theorie nicht vorhergesagten Effektes, den Gontier im darauffolgenden Jahr mit **Above Threshold Ionisation, ATI**, bezeichnete [GON 80]. Es war eine Multiphotonenionisation von Xenon, deren Photoelektronenspektrum zwei Elektronenmaxima zeigte, das für eine 6-Photonen- und ein weiteres für eine 7-Photonenionisation.

Kruit's Experiment 1983 [KRU 83] mit Intensitäten von  $10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$  dokumentierte eine ganze Serie von Elektronenspektren mit vielen Maxima im Abstand der Photonenenergie, bei denen das dominante Elektronenmaximum zu höheren Elektronenenergien hin verschoben und was mit dem störungstheoretischen Ansatz nicht erklärbar war. Ein neuer theoretischer Ansatz, der die Strahlung nicht mehr als Störung interpretierte, löste dieses Problem. Erstmals von Keldysh 1965 [KEL 65], ausgehend von Rechnungen von Volkov 1935 [VOL 35], beschrieben und von Faisal 1973 und Reiss zum nicht störungstheoretischen Modell erweitert, ist die **KFR** – Theorie für die Beschreibung der Prozesse für höhere Strahlungsintensitäten geeignet.

1987 zeigte das Experiment von Freeman erstmals eine Substruktur im Elektronenspektrum [FRE 87], die ebenfalls durch ein Modell ohne störungstheoretischer Basis erklärt wurde. Durch die Berücksichtigung einer intensitätsabhängigen Verschiebung atomarer Niveaus, dem AC-Starkshift, wird eine „**Resonant Enhanced Multi Photon Ionisation**“, **REMPI**, ermöglicht. Auch dieser Schritt war durch eine Weiterentwicklung der Lasertechnologie ermöglicht worden, denn es war die Verkürzung der Pulsdauer in den Subpikosekundenbereich, die es erlaubte, die bisher beobachteten „breiten“ Energiespektren aufzulösen. Entscheidend ist dabei, daß der Laserpuls in diesem Fall den Wechselwirkungsbereich bereits verlassen hat, wenn das Elektron die Wechselwirkungszone verläßt.

Viele Untersuchungen wurden, aus experimentellen Gründen, vorwiegend an Edelgasen [EDGA] und Alkaliatomen [ALKALI] durchgeführt. Experimente am Wasserstoffatom sind nur von wenigen Gruppen [HYDR] versucht worden, denn die Erzeugung von atomarem Wasserstoff und die Detektion der relativ geringen Signale stellt nicht nur hohe experimentelle Anforderungen sondern erfordert auch zusätzliche apparative Komponenten.

Atomarem Wasserstoff aber kommt eine besondere Bedeutung zu, da er als einfachster Testfall für alle theoretische Modellberechnungen dient. 1973 wurde von M. LuVan [LUV 73] atomarer Wasserstoff bei einer Wellenlänge von 530 nm untersucht. Es handelte sich um eine nichtresonante 6-Photonen Multiphotonenionisation. Den resonanten Prozeß, REMPI, am Wasserstoff detektierte Kelleher [KEL 85] erst 12 Jahre danach mit einer Strahlung von 365 nm für die 3-Photonenresonanz  $1s > 2p$ . Experimente von Muller et al. [MUL 86] schlossen sich 1986 für eine 3-Photonenresonanz  $1s > 3p$  bei einer Wellenlänge von 284 nm an. Ihm gelang im Rahmen dieser Experimente auch erstmals der Nachweis eines ATI-Prozesses am Wasserstoffatom.

Die winkelselektive Erfassung der emittierten Elektronen einer Multiphotonenionisation stellt eine weitere Möglichkeit dar, durch diese detaillierteren Informationen den Ionisationsprozeß besser zu verstehen und die Relevanz theoretischer Modelle zu beurteilen. Resonante atomare Zwischenniveaus, die die Ionisation wesentlich beeinflussen, können

direkt über die Partialwellen, die zu einer Winkelverteilung beitragen, identifiziert werden [LAM 76]. Erste Messungen wurden 1974 von Edelstein et al. [EDE 74] am Natrium durchgeführt.

Die MPI – Experimente, die bisher in Bielefeld ausgeführt wurden, haben sich, zunächst unter Verwendung eines Lasersystems im Nano- und Pikosekundenbereich, auf die Untersuchung von Natrium, Strontium und den Edelgasen Xenon und Krypton beschränkt. Diese Versuche wurden dann durch die Verwendung von atomarem Wasserstoff erweitert, bis schließlich ein Lasersystem mit einer Pulsdauer  $< 10^{-12}$  sec ( Subpiko ) zur Verfügung stand, mit dem eine detaillierte Auflösung der Spektren möglich war (Veröffentlichungen seit 1990 : [BI EX] ). Der Unterschied dieser kurzen Pulse zum Nanosekundenbereich ist, daß die Elektronen nicht mehr mit einem Laserfeld nach der Ionisation wechselwirken, sondern sich von dem Ion mit genau der kinetischen Energie entfernen, die sie als Überschußenergie aus dem Multiphotonenprozeß besitzen. 1993 wurde eine weitere Ausbaustufe des Lasersystems, die Endverstärkung des Laserpulses durch eine Bethune Zelle, beendet. Eine Leistungserhöhung um den Faktor 5 eröffnete neue Möglichkeiten, Multiphotonen - Experimente durchzuführen.

Gegenstand dieser Arbeit ist eine Untersuchung von Multiphotonenprozessen an atomarem Wasserstoff und an dem Edelgas Xenon. Mit der, im Vergleich zu bisherigen Untersuchungen hohen Intensität ist es möglich, Photoelektronen mit höheren Energien zu erzeugen und deren Winkelverteilung zu detektieren. Die Energie des Laserpulses von 2,5 Millijoule bei 610 nm ist für die Erzeugung der 2. Harmonischen ( 305 nm ) ausreichend, so daß auch in diesem Wellenlängenbereich Messungen möglich sind.

Ein weiteres Experiment beschäftigt sich mit der Fragestellung, ob neben der Multiphotonenionisation Atome in einem intensiven Laserpuls in Rydbergzuständen „überleben“ können. Die Messung soll dokumentieren, welchen Anteil dieser Prozeß relativ zur Gesamtionisation hat und welche Rydbergzustände besetzt werden.

Da die Laserintensität die Erzeugung harmonischer Wellenlängen mit ausreichender Intensität erlaubt, ist es möglich, ein Experiment durchzuführen, bei dem zwei Laserpulse unterschiedlicher Frequenz einen MPI-Prozeß initiieren. Beide Wellenlängen sind Vielfache voneinander, so daß auch eine feste Phasenbeziehung zwischen den beiden Strahlungsfeldern besteht. Diese kann aber auch variiert werden. Das Ziel dieser für atomaren Wasserstoff ersten Messungen dieser Art ist es, die Beeinflussung der ATI-Spektren durch bichromatischer Felder zu studieren.

Die Ionisation in intensiven Strahlungsfeldern kann mit steigender Intensität in den MPI-, den Tunnel-, den „over the barrier-“ und den Stabilisationsbereich aufgeteilt und mit dem Keldysh-Parameter  $g = \sqrt{2\omega^2 I_p / I}$  ( $\omega$  : Frequenz,  $I_p$  : Ionisationspotential  $I$  : Intensität des Feldes ) zugeordnet werden. Der Wert von  $\gamma$  kann als die Zeit in Einheiten der optischen Zyklen interpretiert werden, die ein Elektron benötigt, um die Potentialbarriere „zwischen“ Atom und Laserfeld zu durchtunneln. Für den Tunnelbereich ist der Wert des Keldysh-parameters  $g < 1$ , für den MPI-Bereich  $g > 1$ . Obwohl unser Bicolor-MPI-Experiment mit  $g \approx 2$  eindeutig dem Bereich der Multiphotonenionisation zugeordnet werden muß, sind, wie wir zeigen werden, auch Charakteristika der Tunnelionisation zu beobachten.

## 2 Grundlagen

### 2.1 Multiphotonenionisation

Als Photoionisation bezeichnet man einen Prozeß, bei dem ein Atom ein Photon aus einem elektromagnetischen Strahlungsfeld absorbiert und dabei ionisiert wird. Ein Teil der Photonenenergie wird dazu genutzt, die Ionisationsschwelle zu überwinden. Die verbleibende Restenergie geht aufgrund der Erhaltungssätze für Energie und Impuls als kinetische Energie auf das Elektron über, da die Masse des Ions zu groß ist, um seine Geschwindigkeit wesentlich zu verändern. Diesen elementaren Vorgang beschreibt die Gleichung des Photoeffekts von Einstein:

$$E = h\nu - E_I \quad (21-1)$$

dabei ist:  $E$  : kin. Energie,  $E_I$  : Ionisationsenergie,  $h\nu$  : Photonenenergie

Ist aber die Photonenenergie für eine direkte Ionisation nicht ausreichend, kann eine **Multi-Photonen-Ionisation ( MPI )** stattfinden. Bei diesem Vorgang werden mehrere Photonen absorbiert, so daß in der Summe eine hinreichend hohe Energie für die Ionisation zur Verfügung steht. In der **Low Order Perturbation Theorie ( LOPT )** hat man folgende Vorstellung des Prozesses gewonnen, siehe Bild 21.1:

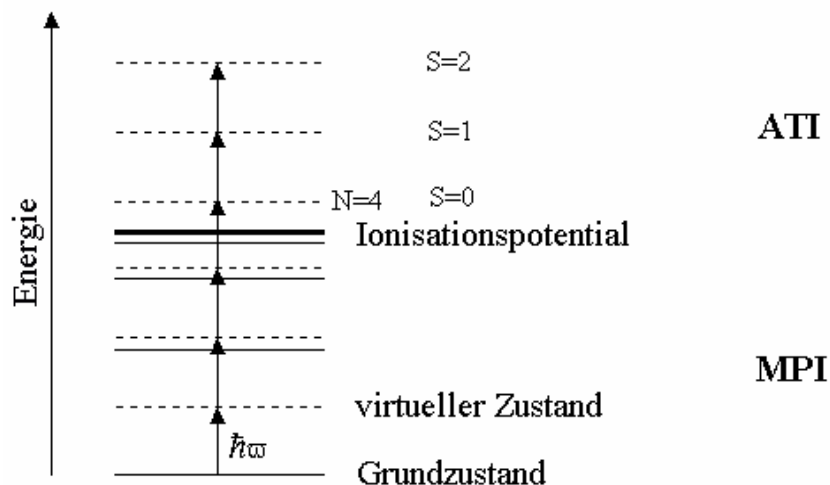


Bild 21.1 : Über virtuelle Zwischenzustände absorbiert das Atom Photonen, bis die Ionisationsschwelle erreicht ist. Werden mehr Photonen absorbiert als für die Ionisation benötigt werden, heißt dieser Prozeß **Above Threshold Ionisation, ATI**.

Es werden quantenmechanisch erlaubte, virtuelle Energieniveaus ( keine Eigenzustände des Atoms ) mit einer außerordentlich kurzen Lebensdauer besetzt : eine grobe Abschätzung mit Hilfe der Heisenberg – Unschärferelation  $\Delta E \times \Delta t \approx \hbar$  führt zu einem Wert, der umgekehrt proportional des Abstandes zum nächsten Eigenzustandes  $\Delta E$ , also kleiner als die Dauer eines optischen Zyklus  $\approx 10^{-15}$  sec ist. Während dieses Zeitraumes muß ein weiteres Photon zur Verfügung stehen, um das nächste (virtuelle) Niveau zu erreichen. Es sind drei unterschiedliche Konstellationen möglich :

- i. Ist der energetische Abstand  $\Delta E$  der Zwischenzustände vom nächsten Eigenzustand des Atoms sehr groß, so ist ein intensives Feld erforderlich, um diesen Prozeß zu ermöglichen. In einem vereinfachten Bild bedeutet das, daß eine hohe Photonendichte im Wechselwirkungsbereich vorhanden sein muß, um in der kurzen Zeit eine hinreichend große Wahrscheinlichkeit für eine Absorption zu erreichen.
- ii. Wenn dieser Abstand  $\Delta E$  sehr klein ist, entspricht der Eigenzustand angenähert der Energie des Zwischenzustandes. Hier ist  $\Delta t$  entsprechend größer, d.h. die Lebensdauer sehr viel länger als im nichtresonanten Fall. Man spricht bei diesem Verlauf von der **Resonant-Enhanced-Multi-Photon-Ionisation ( REMPI )**. Die Intensitäten, die für diese Ionisation benötigt werden, sind relativ gering, da die Rate für eine resonante Anregung sehr viel höher ist als bei den Prozessen der ersten Gruppe. Das Elektron kann in dem angeregten Zustand auf das nächste Photon „warten“.
- iii. Eine weitere Situation stellt die Position des Zwischenzustandes im Kontinuum dar. Diese Zustände sind, wie es der Name schon andeutet, kontinuierlich und können daher mit beliebigen Photonenenergien erreicht werden. Für eine weitere Photonenabsorption ist allerdings die Wechselwirkung zwischen Elektron und Kern bedingt durch die Impulserhaltung unbedingt erforderlich und so führt die Vergrößerung des Abstandes zwischen Elektron und Kern zu einer drastisch reduzierten Möglichkeit des Atoms, ein Photon zu absorbieren. Prozesse dieser Art werden als **Above Threshold Ionisation ( ATI )** bezeichnet.

Das allgemeine Verhalten eines Elektrons im Strahlungsfeld läßt sich in der klassischen Elektrodynamik mit der Hamiltonfunktion beschreiben :

$$H = \frac{1}{2m} \left( \vec{p} - \frac{e}{c} \vec{A}(\vec{r}, t) \right)^2 - e\phi(\vec{r}, t) \quad (21-2)$$

Der Impuls wurde hier gegenüber der freien Bewegung durch das „Prinzip der minimalen Kopplung“ ( 21-3 ) geändert [FAI 87]. Erlaubt ist diese Reduzierung, da ein Einsetzen in die kanonischen Gleichungen die korrekte Bewegungsgleichung ( Lorentz-Gleichung ) ergibt.



$$\vec{p} \rightarrow \vec{p} - \frac{e}{c} \vec{A} \quad (21-3)$$

Diese Wechselwirkung des Elektrons mit dem äußeren Feld kann durch eine erste Quantisierung semiklassisch formuliert werden, d.h. daß das atomare System quantenmechanisch beschrieben wird, während für das Feld eine klassische Betrachtung gewählt wird. Begründet wird diese Vereinfachung mit den sehr hohen Photonendichten, die für diese Prozesse nötig sind. Die Photonenzahl kann daher als kontinuierliche Variable aufgefaßt werden. Die Schrödingergleichung lautet :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{y}(\vec{r}, t) = \left[ \frac{1}{2m} \left( \hat{p} - \frac{e}{c} \vec{A} \right)^2 - e\mathbf{f} \right] \mathbf{y}(\vec{r}, t) \quad (21-4)$$

Da die Ortsabhängigkeit des Feldes in diesem Fall vernachlässigbar ist, kann als Vereinfachung die Dipolnäherung Anwendung finden :

$$e^{\pm i\vec{k}\vec{r}} = 1 \pm i\vec{k}\vec{r} + \frac{(-i\vec{k}\vec{r})^2}{2!} + \dots \quad (21-5)$$

mit  $k$ : Wellenvektor Eine Abschätzung der Größenordnungen der Wellenlänge zum Atomdurchmesser mit  $ka_0 \ll 1$ , also mit  $k^{-1}$  :  $600\text{nm} = 6 \times 10^{-5} \text{ cm}$  und  $a_0 = 0,5 \times 10^{-8} \text{ cm}$  erlaubt diese Näherung.

Die theoretische Behandlung der MPI erfolgte zunächst, wie oben bereits angesprochen, mit dem LOPT Ansatz. Die Idee dieses Modells ist, den Einfluß des elektromagnetischen Feldes als eine zeitabhängige Störung  $V(t)$  aufzufassen, d.h. daß eine Entwicklung der Übergangsamplitude in Potenzen des Wechselwirkungsterm  $V(t)$  gemacht wird um den niedrigsten nichtverschwindenden Term des N-Photonenprozesses zu erhalten. Es muß grundsätzlich bei diesem Modell darauf geachtet werden, daß die Störung klein gegenüber den weiter auftretenden Potentialen ist. Die entsprechende Schrödingergleichung lautet :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{y}(t) = [H_0 + V(t)] \mathbf{y}(t) \quad (21-6)$$

mit  $[H_0 + V(t)] = H(t) \quad (21-7)$

Das Ziel ist es, Übergangsamplituden  $A_{fi}^{(N)}$  eines ( N )-Photonenprozesses bzw. die experimentell meßbare Wahrscheinlichkeitsamplitude für einen  $\Delta n$ -Übergang in der niedrigsten nicht verschwindenden Ordnung vom Anfangszustand  $|i\rangle$  zum Endzustand  $|f\rangle$  zu finden :

$$|A_{fi}^{(N)}|^2 = \left| -2\mathbf{p}c \left( \frac{1}{\hbar} \right)^N \mathbf{d}(\mathbf{w}_i - \mathbf{w}_f - \Delta n \mathbf{w}) T_{fi}^{(N)} \left( \frac{E}{2} \right)^N \right|^2 = P_{fi}^{(N)} \quad (21-8)$$

$A_{fi}^{(N)}$ : Übergangsamplitude  $T_{fi}^{(N)}$ : Übergangsmatrixelemente wobei die niedrigste Ordnung, hier eine ( N )-Photonenabsorption, betrachtet wird.

Für den Übergang in das kontinuierliche Spektrum definiert man als „differentielle Rate“ :

$$\frac{dW_{fi}^{(N)}}{d\Omega} = 2\mathbf{p} \left( \frac{|E|^2}{4\hbar^2} \right)^{(N)} |T_{fi}^{(N)}|^2 \quad (21-9)$$

$$\text{für } \mathbf{w}_i - \mathbf{w}_f - \Delta n \mathbf{w} = 0 \quad (21-10)$$

Die Abhängigkeit dieser Rate von der Intensität ist in E enthalten und entspricht der Beziehung :

$$I = \frac{E^2}{8\mathbf{p}} c \quad (21-11)$$

d.h. die Rate für einen ( N )-Absorptions (-Emissions) Prozeß wächst in der LOPT mit  $I^N$  .

Der Gültigkeitsbereich der LOPT-Theorie ist allerdings, wie schon erwähnt, eingeschränkt. Ausgehend von der Forderung, daß der erste Term der Störungsreihe der dominierende sein muß, ergibt die grobe Abschätzung der Übergangsmatrixelemente  $T_{fi}^{(n+2)}$  das Verhältnis des ersten zum zweiten Term. Der zweite Term sollte einen Wert der maximal 1% des ersten Terms beträgt aufweisen. Bei einer Photonenenergie von 1eV ist dieses Verhältnis von der Größenordnung O (1) für Intensitäten von  $\approx 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$  - d.h. die LOPT ist bis zu einer Intensität von etwa  $10^{12} \text{ Wcm}^{-2}$  anwendbar.

Eine weitere Einschränkung der Gültigkeit des LOPT Modells ist die Frequenzabhängigkeit. Ist die Energie des Feldes so gewählt, daß durch die Absorption ein Eigenzustand des Atoms erreicht wird, kann das LOPT-Modell die experimentellen Ergebnisse nicht erklären. Bild 21.2 stellt diese Bereiche ( $\omega_j$ ) dar. Der Grund für diese Problematik liegt in der Konstruktion des Übergangsmatrixelements  $T_{fi}^{(N)}$ . Die hier enthaltene Greensche Funktion, der Propagator, verschwindet in dem Fall einer Resonanz mit einem Eigenzustand. Die Amplitude der Übergangswahrscheinlichkeit divergiert.

Die LOPT versagt insbesondere auch dann, wenn die Verschiebung atomarer Energieniveaus im Laserfeld mit der Photonenenergie vergleichbar wird.

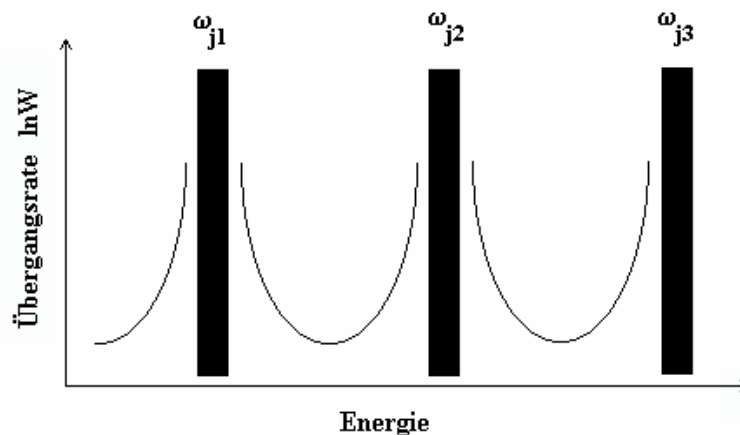


Bild 21.2 : Die schwarz markierten Bereiche  $\omega_{jn}$  sind Resonanzen, die im LOPT – Modell nicht definiert sind.

Schließlich sind mit zunehmender Laserintensität Effekte beobachtet worden, bei denen das Bild der LOPT gänzlich versagt : hohe kinetische Elektronenenergien, die keine andere Erklärung zulassen als die Absorption von mehr Photonen als für die Ionisation erforderlich sind. Hat sich aber das Elektron vom Kern entfernt, so ist es aufgrund der Impulserhaltung nicht mehr in der Lage, Photonen zu absorbieren. Das Bild der virtuellen Zustände, d.h. die sukzessive Absorption von Photonen, kann das Phänomen der **Above Threshold Ionisation (ATI)** demnach nicht mehr erklären.

## 2.2 Above Threshold Ionisation

Eine Messung von Agostini 1979 [AGO 79] an Xenon zeigte ein zweites Elektronenmaximum, das energetisch genau um die Energie eines Photons vom ersten entfernt auftauchte. Dieser von Gontier [GON 80] als ATI bezeichnete Effekt besagt, daß das Elektron in der Lage ist, mehr als nur die zur Ionisation erforderliche Energie, bzw. die zur Ionisation benötigten Photonen ( $N$ ) zu absorbieren. Bei der Photonenabsorption kann eine ganze Serie von Maxima entstehen, die jeweils durch den Wert der Photonenenergie getrennt sind. Es werden ( $N + S$ ) Photonen absorbiert, vgl. Bild 22.1, wobei  $S$  die Anzahl der absorbierten Photonen zählt, die über eine einfache Ionisation hinaus absorbiert werden können.

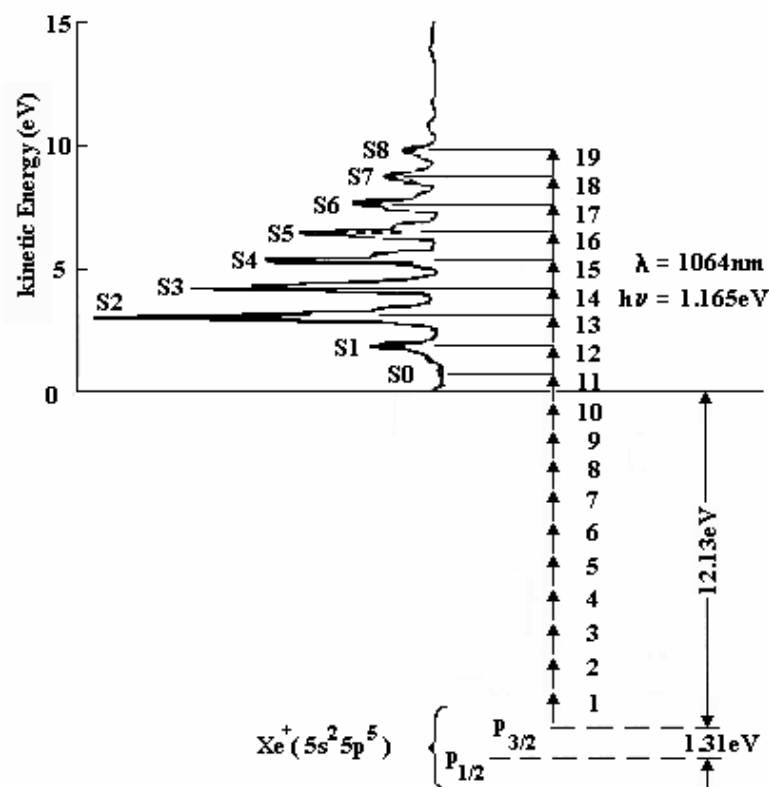


Bild 22.1 : Xenon ATI - Elektronenspektrum [FRE 86]. Es zeigt die Absorption von  $S$  zusätzlichen Photonen oberhalb der ungestörten Ionisationsschwelle.

Kruit et.al. beschrieb 1981 ein weiteres Phänomen, das die LOPT ebenfalls nicht erklärt. Statt eines fortlaufenden Intensitätsabfalls der Elektronenmaxima mit zunehmender Energie,

hat er ein Spektrum gemessen, dessen Intensitätsmaximum nicht bei dem Peak niedrigster Energie liegt [ KRU 81 ]. Bild 22.1 zeigt ein Xenon-Spektrum, in dem beide Effekte verdeutlicht werden [ FRE 86 ]

Der Prozeß, der dies ermöglicht, kann, wie erwähnt, nicht der einer sukzessiven Photonenabsorption sein. Ein Erklärungsansatz, die „Simpleman`s Theory“, war 1988 von H.B. van Linden van den Heuvell und H.G. Muller versucht worden [ LIN 88 ]. Aufgrund der hohen Anzahl der Photonen ging man davon aus, daß eine klassische Formulierung als Grenzfall der Quantenmechanik für dieses Modell für eine qualitative Beschreibung Anwendung finden könnte. Das Verhalten eines Elektrons nach der Ionisation des Atoms wird wie das eines freien Teilchen aufgefaßt, das in einem elektromagnetischen Feld beschleunigt wird. In diesem Modell wird das Atom also lediglich als Elektronenquelle gesehen und der Ionisationsprozeß selbst vernachlässigt.

Im nichtrelativistischen Fall wird das Elektron durch das sich harmonisch ändernde Feld zu einer Oszillation, der Quiverbewegung, gezwungen. Für eine linear polarisierte Welle kann die Integration der Newtonschen Bewegungsgleichung die Geschwindigkeit und Amplitude des Elektrons darstellen :

$$v(t) = \frac{q}{m_e \omega} E_0 (\sin \omega t - \sin \omega t_0) + v_0 \quad (22-1)$$

$q$ : Ladung des Elektrons,  $m_e$ :Masse des Elektrons,  $E$  : Amplitude,  $\omega$  : Kreisfrequenz,  
 $v(t)$  : Geschwindigkeit des Elektrons,  $v_0$  : Geschwindigkeit des Elektrons bei  $t_0$

Experimentell kann nur die mittlere zeitabhängige kinetische Energie detektiert werden, also das Quadrat des Ausdrucks ( 22-1 ) :

$$U = U_0 + U_p (1 + 2 \sin^2 \omega t_0) - \sqrt{8U_0 U_p} \sin \omega t_0 \quad (22-2)$$

mit der potentiellen ponderomotiven Energie :

$$U_p = \frac{q^2 E_0^2}{4m_e \omega^2} \quad (22-3)$$

Die Quiverbewegung stellt hier die Möglichkeit des Elektrons dar, Energie aus dem Feld zu akkumulieren, die höher als die Photonenenergie ist. Obwohl es sich um eine klassische Beschreibung handelt und daher eine Photonenabsorption für ein freies Elektron unmöglich

ist, kann aufgrund der Heisenberg Relation eine Absorption für eine kurze Dauer ( kürzer als eine optische Periode ) stattfinden. Es stellt für diese kurzen Zeiten ebenfalls keinen Widerspruch dar, wenn das Elektron die Quiverenergie in kinetische Energie umwandelt, mit der es sich dann vom Kern entfernt.

Bei starken Feldern und niedrigen Frequenzen wird diese Ionisation, eine Superposition des Coulombfeldes mit dem Laserfeld, als „Tunneling“ bezeichnet. Corkum hat dieses Modell, die „Simplemans Theorie“, anhand eines Experiments erfolgreich verifiziert [ COR 92 ].

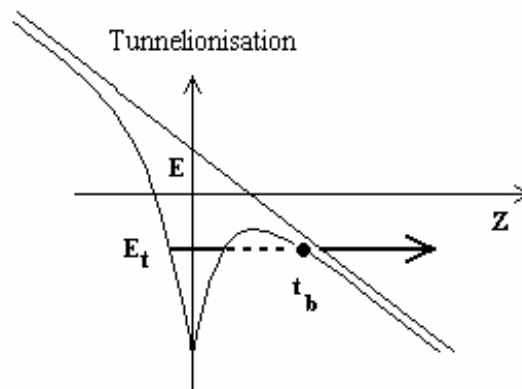


Bild 22.2 : zeigt Elektronen in einer Überlagerung von Coulombpotential und momentanen EFeld in z-Richtung. Die Tunnelionisation  $t_b$  findet kurz unterhalb der Potentialbarriere bei der Energie  $E_t$  statt, die kleiner als das Ionisationspotential ohne Strahlungsfeld ist.

Der wesentliche Unterschied dieses Modells im Vergleich zur LOPT ist, daß hier das Laserfeld nicht mehr als Störung interpretiert wird, sondern dessen Wechselwirkung mit dem Elektron die zentrale Bedeutung hat. Eine S-Matrix Methode, die **Keldysh**, **Faisal**, **Reiss** Theorie ( **KFR**-Theorie ), expliziert dieses quantenmechanische Verhalten, indem Wellenfunktionen eingeführt werden, die nun Zustände des Elektrons im Laserfeld beschreiben, ohne aber das atomare Potential zu berücksichtigen : die Volkov-Wellenfunktionen [VOL 35].

Diese Volkov-Wellenfunktionen  $y_v$  haben die Form von ebenen Wellen mit einer zusätzlichen zeitlich oszillierenden Phase  $d_{osz}$ , die die Folgebewegung ( Quiverbewegung ) des Elektrons im Laserfeld beschreibt :

$$y_v = e^{ikr} e^{-(i/\hbar)E_v t + d_{osz}} \quad (22-4)$$

Für die Energie ergibt sich daraus ein zusätzlicher, von der Feldamplitude quadratisch abhängender Term :

$$E_Q = \frac{A_0^2}{4c^2} = U_p \quad (22-5)$$

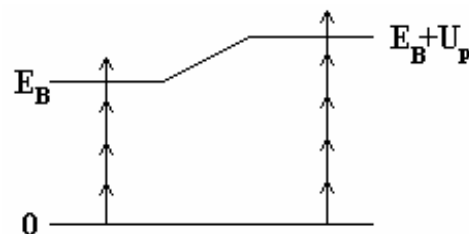


Bild 22.3 : Anhebung der Ionisationsschwelle E durch die ponderomotive Energie U

Dieser Term,  $U_p$ , der in der LOPT nicht auftritt, wird vom Elektron als Potential interpretiert, das zusätzlich zum Ionisationspotential überwunden werden muß. Das bedeutet, daß eine von der Intensität des Feldes abhängige Verschiebung der Ionisationsgrenze stattfindet :

$$U_p = \frac{E_0^2}{4w^2} = \frac{I}{4w^2} \sim I \quad (22-6)$$

Die Auswirkung dieses ponderomotiven Potentials ist, daß das erste Elektronenmaximum, das in einem Spektrum erscheint, nicht unbedingt bei der Energie  $k_f^2 / 2 = n_0 w - E_B$  erwartet werden muß.

Für den speziellen Fall der Above Threshold Ionisation, ATI, kann nun auch eine Erklärung für die experimentellen Ergebnisse gegeben werden. Statt der Photonenabsorption über virtuelle Zwischenzustände, wird diese Absorption als *ein* Elementarschritt interpretiert. Als Feynman Diagramm stellt sich dieser Schritt sehr anschaulich dar :

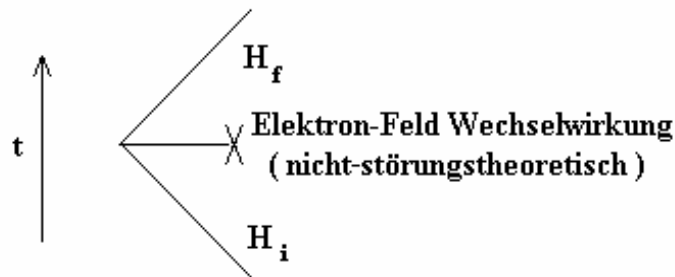


Bild 22.4 : Feynman Diagramm einer Atom – Feld Wechselwirkung

Die Zustände vor und hinter der Vertex gehören zu den erwähnten unterschiedlichen Reverenz-Hamiltonoperatoren :

$$\text{atomarer-Hamilton Operator} \quad H_i: \frac{p^2}{2m} + V_c \quad (22-7)$$

$$\text{Volkov-Hamilton Operator} \quad H_f: \frac{p^2}{2m} + V_f \quad (22-8)$$

Die KFR-Theorie analysiert also, im Unterschied zur LOPT, die Wechselwirkung des Elektrons mit dem Feld. Daraus ergeben sich folgende Konsequenzen :

- die Wechselwirkung des emittierten Elektrons mit dem Coulombpotential des Kerns wird nicht mehr berücksichtigt. Experimentell aber ist die Coulombwechselwirkung während des gesamten Zyklus präsent, sowohl im Anfangszustand  $k = -\infty$  (Präparationszustand) als auch im Endzustand  $k = +\infty$  (im Detektor)
- eine Berücksichtigung von Resonanzen ist, genau wie in der LOPT, nicht möglich. Der Endzustand ( Volkovzustand ) und alle Zwischenzustände in höheren Ordnungen liegen ausnahmslos im Kontinuum.
- die Verschiebung der Ionisationsschwelle hat nicht zur Folge, daß ebenfalls Eigenzustände verschieben. Die KFR-Theorie geht von ungestörten Anfangszuständen aus.
- die Berechnung der Rate, bzw. des Wirkungsquerschnitts führt zu Elektronenmaxima, deren relative Signalstärke zueinander nach einer Winkelintegration erklärt werden können. Der absolute Wert kann nicht korrekt bestimmt werden.
- Die Theorie ist am besten zur Beschreibung der Multiphotonenionisation von negativen Ionen geeignet



### 2.3 Durch den AC – Starkshift induzierte Resonanzen bei der Multiphotonenionisation in intensiven Laserpulsen

Experimentelle Daten, vgl. Bild 22.1 im Kap. 2.2, zeigten ein Verhalten des Spektrums, das von dem bisher dargestellten theoretischen Modell der LOPT abweicht und auch nur teilweise von der KFR–Theorie beschrieben werden kann. Die prognostizierte, mit zunehmender Elektronenenergie sukzessive Abnahme der Signalintensität der Elektronenmaxima kann experimentell nicht verifiziert werden. Stattdessen findet man die größte Signalstärke bei dem mit S2 gekennzeichneten Maximum. Dieses Verhalten, daß das höchste Elektronensignal nicht für das S0–ATI– Maximum festzustellen ist, wird als „peak-switching“ bezeichnet.

Ausgehend von dem ponderomotiven Potential, das die Reaktion des Elektrons auf das hohe elektromagnetische Feld der Laserstrahlung beschreibt, reagieren sowohl die Ionisationsgrenze als auch atomare Eigenzustände auf das äußere Feld mit einer energetischen Verschiebung, die im folgenden Bild 23.1 skizziert ist :

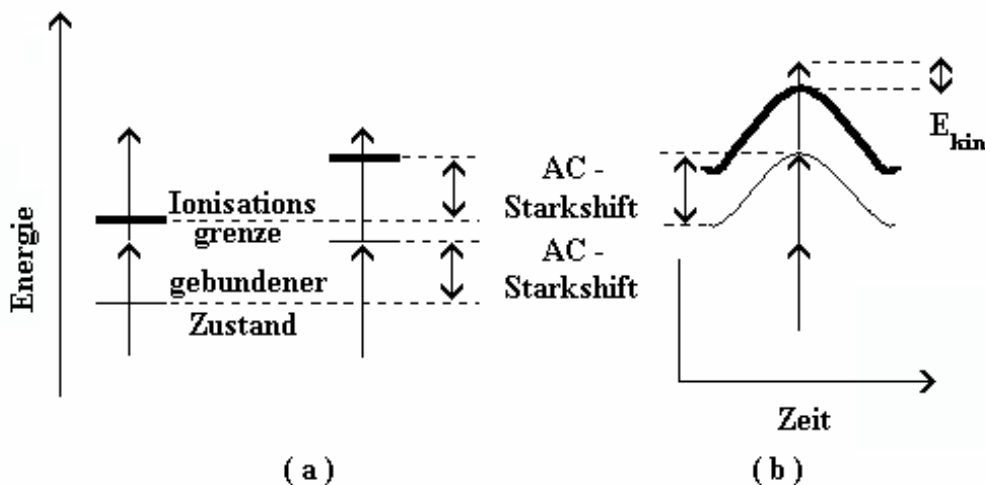


Bild 23.1 : ( a ) bei geringer Intensität ist der Zwischenzustand nicht resonant mit der n-fachen Photonenenergie. Verursacht durch eine Intensitätserhöhung tritt eine Verschiebung des atomaren Niveaus auf ( Starkshift ), die den energetischen Abstand zum Grundzustand vergrößert den Eigenzustand in Resonanz zur Photonenenergie bringen kann. ( b ) Ein Laserpuls mit einem gaussförmigen zeitlichen Profil durchläuft einen Intensitätsbereich von Null bis zur seinem Maximum und verschiebt aufgrund des AC-Starkshifts die Zustände entsprechend der jeweils korrespondierenden Intensität.

Theoretisch läßt sich dieses Problem mit der Floquet–Theorie lösen. Die wesentliche und neue Idee dieses nicht-störungstheoretischen Modells ist es, den in der Zeit periodischen

Hamiltonoperator mit Hilfe des Floquet – Theorems [FLO 83] für Differentialgleichungen mit periodischen Koeffizienten zu entwickeln. Dies ist möglich, wenn von einem monochromatischen, periodischen Feld mit  $2\mathbf{p}/\omega$  ausgegangen werden kann.

Die Schrödingergleichung lautet :

$$i \frac{\mathcal{H}}{\mathcal{H}t} \mathbf{y}(\vec{r}, t) = \underbrace{\left[ H_{atom}(\vec{r}) - \frac{1}{c} \sum_{i=1}^N \hat{p}_i \bar{A}(t) + \frac{NA^2(t)}{2c^2} \right]}_H \mathbf{y}(\vec{r}, t) \quad (23-1)$$

mit : 
$$\bar{A}(t) = \hat{\mathbf{e}} \frac{A_0}{2} [e^{i\omega t} + c. e.]$$

Für den mit der Periode  $2\mathbf{p}/\omega$  periodisch zeitabhängigen Hamiltonoperator gilt:

$$H(t + \mathbf{t}) = H(t) \quad (23-2)$$

Das Ziel ist es, ein System von zeitunabhängigen, stationären Differentialgleichungen für die Lösung  $\mathbf{y}(\vec{r}, t)$  zu bestimmen. Mit dem Floquet – Theorem

$$\mathbf{y}(\vec{r}, t) = e^{-iE_Q t} \mathbf{f}(\vec{r}, t) \quad (23-3)$$

kann der Floquet-Hamiltonoperator entwickelt werden :

$$\left( H - i \frac{\partial}{\partial t} \right) \mathbf{f}(r, t) = E_Q \mathbf{f}(r, t) \quad (23-4)$$

Floquet-Hamiltonoperator  $H_F$

Dieser Floquet-Hamiltonoperator ist ein stationäres Gleichungssystem, das ein Eigenwertproblem für die Quasi-Energie  $E_Q$  darstellt. Die zugehörigen Lösungen von (23-3) werden als Quasienergie- bzw. Floquetzustände bezeichnet.

Die im Exponenten von ( 23-3 ) auftretende Energie  $E_Q$  ist zeitunabhängig und wird als Quasi – Energie bezeichnet. Sie ist für Prozesse in intensiven Laserfeldern komplex :

$$E_Q = E_0 + \Delta - \frac{i}{2}\Gamma \quad (23-5)$$

$E_0$  : Energie des ungestörten Zustands,  $\Delta$  : dynamische Starkshift des Zustandes im Feld  
 $\Gamma / \hbar$  : totale Ionisationsrate.

Der Floquet – Hamilton Operator beinhaltet, im Gegensatz zu den störungstheoretischen Modellen, die gesamte Information über das Atom. Die Folge dieser vollständigen Beschreibung ist, daß eine Untersuchung resonanter Prozesse und damit die Berechnung der angesprochenen Substruktur der einzelnen ATI-Gruppen ermöglicht wird. Ein Vergleich mit der LOPT, vgl. Bild 23.2, dokumentiert deutlich die gravierenden Unterschiede beider Modelle. Die Ionisationswahrscheinlichkeit des Wasserstoffatoms pro Zeiteinheit,  $\Gamma / \hbar$ , die dem Betragsquadrat eines Floquetzustandes entspricht, nimmt proportional zu  $\exp[-\Gamma t / \hbar]$  ab. Bild 23.2 zeigt diese Ionisationswahrscheinlichkeit für atomaren Wasserstoff aus dem Grundzustand H(1s) als Funktion der Strahlungsintensität eines linear polarisierten Laserfeldes, wobei die Ergebnisse des LOPT-Modells für die Ionisation mit  $n = 12$  bzw. 13 Photonen durch die beiden oberen Kurven dargestellt sind. Die im darunterliegenden, mit dem Floquet-Modell berechneten Graphen auftretenden Resonanzen sind Bereiche, in denen die Quasienergie des Floquetzustandes im feldfreien Grenzfall in den Grundzustand des Wasserstoffatoms übergeht und als Funktion der Laserintensität Quasienergien anderer Zustände kreuzt [FRI 90], vgl. auch Bild 23.3. Ein weiterer Aspekt ist, daß die durch nicht-störungstheoretische Rechnung ermittelte Ionisationswahrscheinlichkeit, die beliebig viele Photonen für den Prozeß zuläßt, niedriger ist, als die durch das störungstheoretische Modell für 12 bzw. 13 Photonen vorausgesagten Werte.

Betrachtet man den Resonanzvorgang im Hinblick auf die Substruktur eines Elektronenmaximums, so ist neben der Intensitäts- auch eine Wellenlängenabhängigkeit gegeben. Die Intensitätsabhängigkeit impliziert die Verschiebung der Zustände in Abhängigkeit vom Zustand selbst und der Intensität, vgl. Bild 23.3 - die Wellenlängenabhängigkeit ergibt sich aus der Forderung, daß die Zustände um ein Vielfaches der Photonenenergie getrennt sein müssen [CHI 84]. Rechnungen zu dieser Wellenlängenabhängigkeit sind für atomaren Wasserstoff und für Strahlung im sichtbaren Bereich von Y. Gontier und M. Trahin für Zustände  $n \geq 1$  [GOT 89] und von L. Pan und C.W. Clark für den Grundzustand [PAN 88] vorgenommen worden.

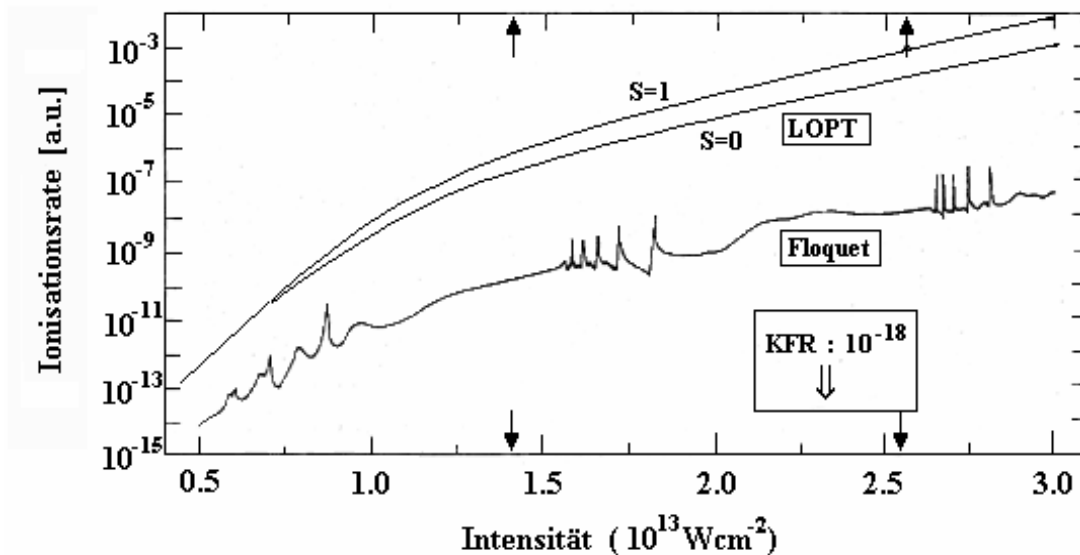


Bild 23.2 : Diese von R. Potvliege und R. Shakeshaft [POT 89] erstellte Vergleichsgraphik, basierend auf einer von ihnen durchgeführten numerischen Lösung des Floquetmodells für atomaren Wasserstoff, zeigt die totale Ionisationsrate von atomarem Wasserstoff  $H(1s)$  bei linear polarisierter Strahlung mit 1064 nm. Die oberen Kurven,  $S=0$  und  $S=1$ , zeigen integrierte Raten für die  $12+S$  Photonenionisation, gerechnet mit LOPT. Die Pfeile markieren Intensitäten, bei denen der Realteil des  $H(1s)$  Floquet-Eigenwertes die 13- bzw. 14- Photonen Ionisationsgrenze schneidet. Ein Hinweis auf die KFR-Theorie macht deutlich, daß in diesem Modell die durch Resonanzen erhöhte Ionisationswahrscheinlichkeit nicht berücksichtigt wird. In diesem Zusammenhang ( für dieses Bild ) muß darauf hingewiesen werden, daß im verwendeten KFR-Modell die Coulombwechselwirkung nicht berücksichtigt wird.

Die intensitätsabhängige Verschiebung der Zustände und die sich daraus ergebenden Resonanzen können, wie oben beschrieben, mit dem Floquet-Hamilton-Operator bestimmt werden.. Schematisch verdeutlicht die Graphik 23.3 die Entwicklungen der atomaren Zustände mit zunehmender Intensität und die resultierenden Resonanzen, die den Kreuzungspunkten der verschobene Zustände ( $E_j - n\omega$ ) mit dem Grundzustand  $1s$  bei der korrespondierenden Intensität  $I_0$  bzw.  $I_1$  entsprechen.

Das folgende Bild 23.4 und Bild 24.2 im Kap. 2.4 zeigen die Positionen der Elektronenmaxima gerechnet von M. Crance et al. [CRA 90] zusammen mit den experimentellen Daten, die am „Bielefeld-Experiment“ von D. Feldmann et al. und H. Rottke gemessen worden sind. Die Ergebnisse des Experiments, die als grau unterlegte Bereiche dargestellt sind, bestätigen eine Übereinstimmung für den Bereich der ersten ATI-Gruppe, wobei die von der Simulation prognostizierten zu niedrigen Energiewerte der Signalmaxima auf die im Experiment tatsächlich vorliegenden Eigenschaften des Laserpulses ( Raum- und Zeitprofil, Intensität und Intensitätsverteilung ) zurückführbar sein könnten.

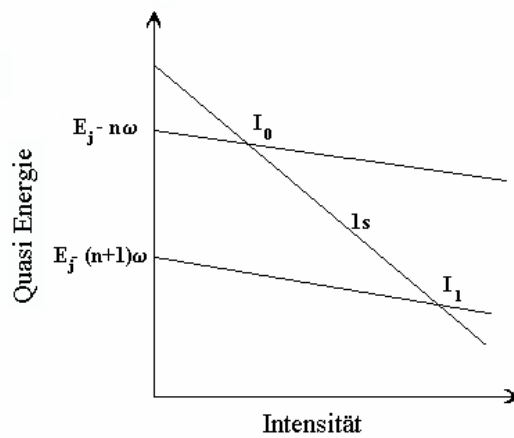


Bild 23.3: zeigt schematisch, für welche Intensität eine Resonanz für einen bestimmten Zustand erwartet werden kann. Eine Verschiebung des Zustandes  $E_j$  um  $-n\omega$  bzw. um  $-(n+1)\omega$  kann im Kreuzungspunkt mit  $1s$  bei einer Intensität von  $I_0$  bzw.  $I_1$  ionisiert werden.

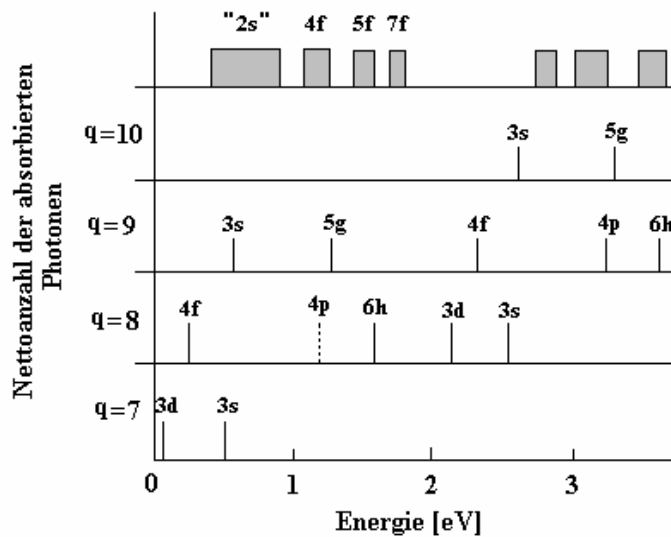


Bild 23.4 : Die von M. Crance [CRA 90] berechneten Positionen der Elektronenmaxima für atomaren Wasserstoff bei einer Wellenlänge von 608 nm.  $q$  bezeichnet hier die Nettoanzahl der absorbierten Photonen. Jedes Maximum ist mit der Notierung des feldfreien Ausgangszustandes bezeichnet. Die grau unterlegten Rechtecke zeigen die Position der gemessenen Elektronenmaxima im „Bielefeld-Experiment“ [ROT92]

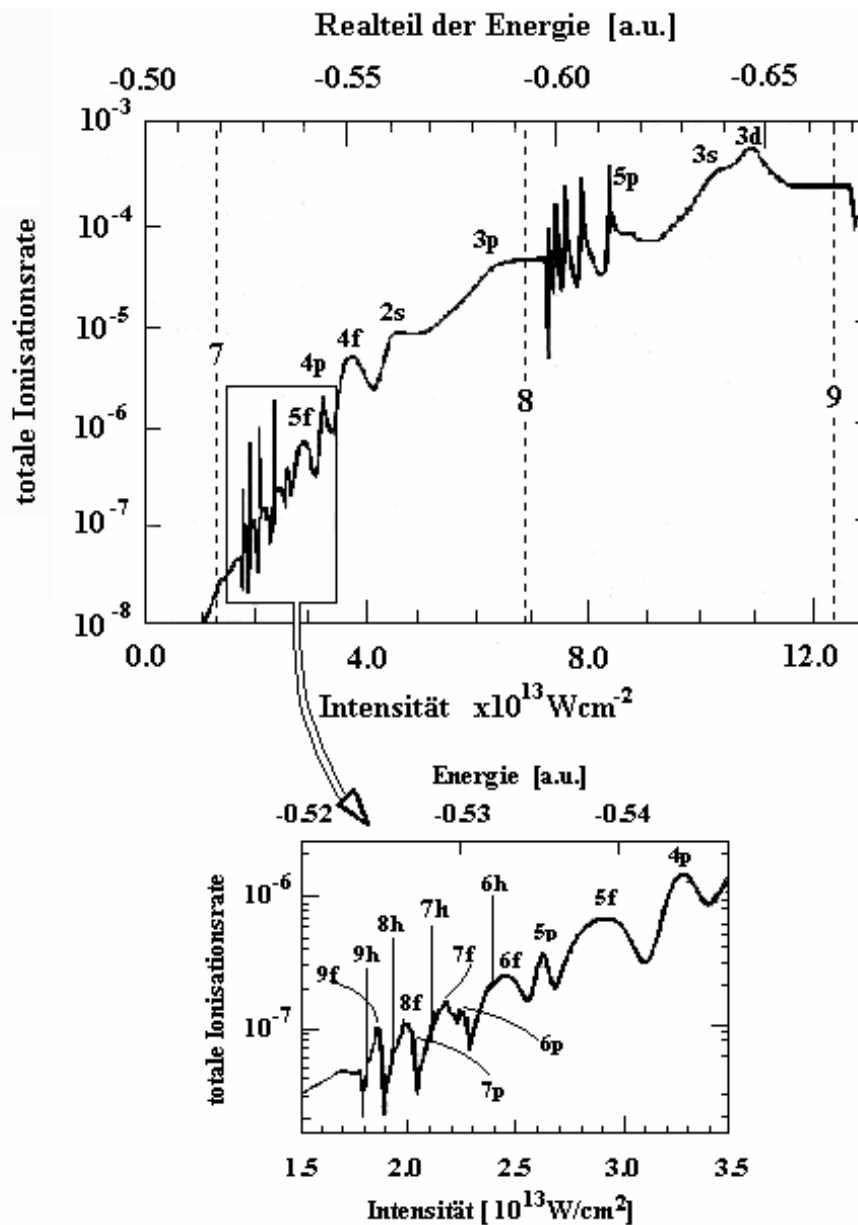


Bild 23.5: die totale Ionisationsrate gerechnet für Wasserstoff H(1s) und lineare Polarisation bei 616nm [DÖR 90] für den Intensitätsbereich 0 bis  $12 \times 10^{13}$  W/cm $^2$ .

Weitere Rechnungen von M. Dörr et al. [DÖR 90] bestätigen im wesentlichen die Simulationen von M. Crance. Eine Darstellung dieser Ergebnisse zeigt das Bild 23.5. M. Dörr wählt eine geänderte Darstellungsform, wobei die Nettoanzahl der absorbierten Photonen mit gestrichelten vertikalen Linien eingezeichnet ist. Besonders der erste Bereich, d.h. die Absorption von 7 Photonen, ist für den Vergleich mit den experimentellen Daten von Interesse. Eine Vergrößerung darunter zeigt diese Substruktur deutlicher.



Is reagiert auf die zunehmende Feldintensität mit einer minimalen Absenkung ( einige meV ), vgl. hierzu die Rechnung von C.W. Clark et al. [PAN 88] und Trahin et al. [TRA 89]. Mit Hilfe der Bestimmung dieser Starkverschiebung ist eine Identifikation der möglichen resonanten Zwischenstände durch die gemessenen kinetischen Energie der Elektronen möglich.

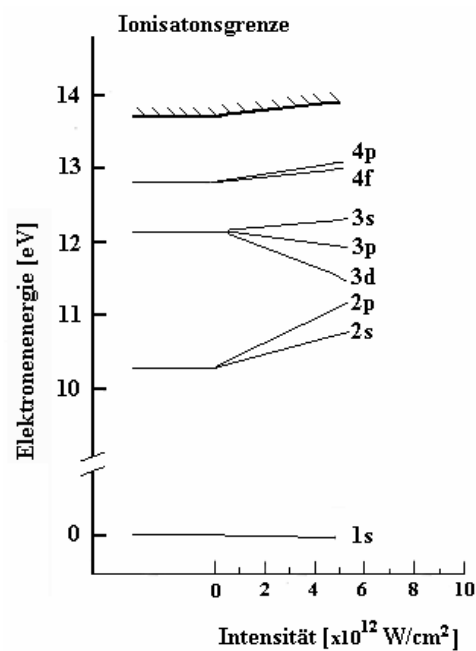


Bild 23.7 : Das Bild zeigt die von Trahin et al. [TRA 89] gerechnete Starkverschiebung für die Zustände  $n=2,3,4$  für atomaren Wasserstoff bei einer Wellenlänge von 608 nm. Deutlich sind die völlig unterschiedlichen Entwicklungen der atomaren Niveaus ( $n,l$ ) zu beobachten, die selbst Kreuzungspunkte ( Mischzustände ) zulassen. ( Man beachte die im Vergleich zu Abbildug 23.6 viel kleineren Intensitäten )



## 2.4 Multiphotonenionisation mit ultrakurzen, intensiven Laserpulsen

Die klassische Betrachtung der Bewegung eines geladenen Teilchen im elektromagnetischen Feld führt zu dem Modell des freien Elektrons nach der Ionisierung. Unter der Annahme, daß für das Elektron im Zeitpunkt  $t_0$  der Ionisation  $v(t_0) = 0$  gilt, ergibt sich für die Geschwindigkeit zu einem beliebigen Zeitpunkt  $t$  :

$$v(t) = \underbrace{\left(\frac{F_0}{\omega}\right)\cos(\omega t)}_{\text{Quiverbewegung}} - \underbrace{\left(\frac{F_0}{\omega}\right)\cos(\omega t_0)}_{\text{Driftbewegung}} \quad (24-1)$$

$F_0$  : Feldamplitude,  $\omega$  : Frequenz des Feldes,  $t_0$  : Ionisationszeitpunkt

Die Driftbewegung wird bei  $t_0$  durch die Ionisation festgelegt, während die Zitterbewegung ( Quiverbewegung ) eine Schwingung des Elektrons in der Ebene des E-Vektors des Laserfeldes ist. Dieser Quiverbewegung im oszillierenden elektrischen Feld wird eine Energie zugeordnet, die aus der zeitlichen Mittelung des Quadrates des Vektorpotentials des Feldes  $\vec{A} = \vec{e}_z (c/\omega) F_0 \cos(\omega t)$  berechnet werden kann :

$$E_{quiver} = \frac{F_0^2}{4\omega^2} \quad (24-2)$$

Beide Bewegungsanteile tragen für den Fall linearer Polarisierung zu der gesamten kinetischen Energie  $E_{ATI}^{(s)}$  des emittierten Elektrons bei [DEL 94] :

$$E_{ATI}^{(s)} = \left(F^2 / 4\omega^2\right) \left(1 + 2 \cos^2 \omega t_0\right) \quad (24-3)$$

Der erste Term der rechten Seite der Gleichung repräsentiert die Quiverenergie des Elektrons. Dieser Term verschwindet, wenn das Elektron den Fokusbereich verläßt oder aber der Laserpuls beendet ist. Der zweite Term der rechten Gleichungsseite stellt die Translationsenergie des Elektrons dar, die auf dem Flug zum Detektor erhalten bleibt – d.h.

aber für die Situation ultrakurzer Laserpulse, daß nur dieser letzte Term Relevanz hat und im Bereich von 0 bis  $F^2 / 2w^2$  mit sich ändernden  $t_0$  variiert [ DEL 94 ].

Das Elektron wird allein durch die kinetische Energie der Driftbewegung ins Kontinuum gebracht, während die Quiverenergie mit der Anhebung der Ionisationsschwelle verbunden werden kann.

Schematisch kann die Reaktion eines Elektrons in einem Atom auf ein äußeres elektromagnetisches Feld, das während eines kurzen Zeitraums ( Subpikosekunden ) existiert, durch die Darstellungen 24.1 verdeutlicht werden. Da die Pulsdauer  $\tau$  für einen sehr kurzen Puls die Forderung  $t \ll d / v \sim 10^{-11}$  sec (  $d$  : Fokusbereich,  $v$  : Frequenz ) erfüllt, bleibt die Position des Elektrons nach der Ionisation und innerhalb von  $\tau$  nahezu unverändert. Da keine Möglichkeit für das Elektron existiert, ponderomotive Energie aufzunehmen, kann ein unverfälschtes Elektronenspektrum bei niedriger kinetischer Elektronenenergie detektiert werden.

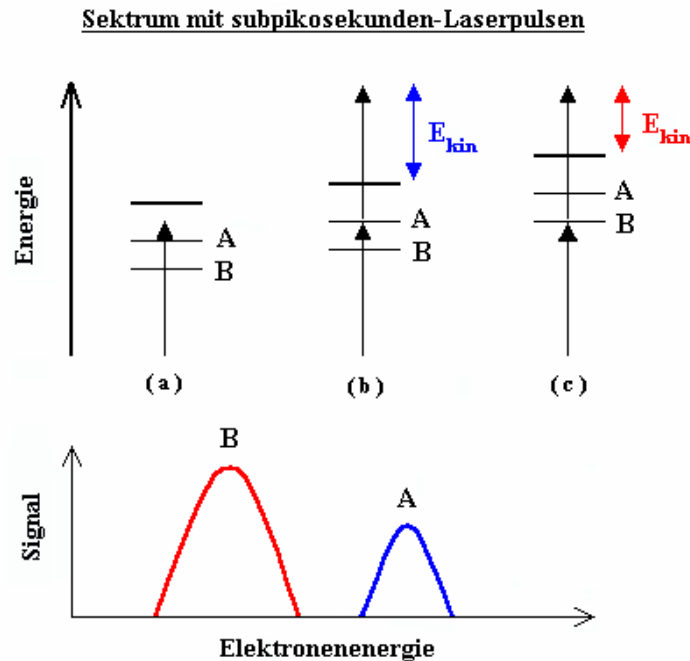


Bild 24.1 : ( a ) Ohne Starkshift, bei geringer Intensität, ist kein Zustand resonant ( b ) Für diese Strahlungsintensität ist der Zustand A in Resonanz mit dem n-fachen der Photonenergie ( c ) Wird die Intensität der Strahlung weiter erhöht, vergrößert sich die Verschiebung ( Starkshift ) der Zustände, sodaß in diesem Fall der Zustand B resonant wird. Für das Elektronenspektrum ist durch die Verwendung von subpikosekunden Laserpulsen eine detaillierte Auflösung des Spektrums möglich.

Das Ergebnis ultrakurzer Laserpulse ist die Ausbildung einer Substruktur in jeder ATI-Gruppe, die zuerst von R. Freeman [FRE 87] an Xenon beobachtet wurde. Interpretiert wird diese Aufspaltung als Beiträge von verschiedenen REMPI-Prozessen über diskrete atomare

Energiezustände, die durch den AC-Starkshift im intensiven Strahlungsfeld in Resonanz geschoben werden. Gleichung 24-4 beschreibt die Resonanzbedingungen, die nach Absorption von  $(K-1)$  Photonen eine Signalüberhöhung erzeugen :

$$E_0 + (K-1)\omega = E_n + \frac{F_0^2(r,t)}{4\omega^2} \quad (24-4)$$

$E_0$ : Ionisationsenergie,  $E_n$ : resonanter Zustand,  $F_0^2(r,t)/4\omega^2$  entspricht der ponderomotiven Energie  $U_p$  und somit dem AC-Starkshift von hohen Rydbergzuständen  $E_n$ .

Die energetische Position des n-ten Elektronenmaximums in der s-ten ATI-Gruppe kann mit Gleichung 24-5 – mit der Einschränkung :  $(E_0 - E_n) < \omega$  – bestimmt werden :

$$E_n^{(s)} = E_n + (s+1)\omega \quad (24-5)$$

Messungen mit ultrakurzen Pulsen wurden ebenfalls für Xenon am „Bielefeld Experiment“ durchgeführt und erstmals für atomaren Wasserstoff [ FEL 90 ]. Bild 24.2 zeigt das detektierte ATI-Wasserstoffelektronenspektrum für die erste Floquet-Zone ( $S = 0$ ). Die Substruktur bzw. die Eigenenergien vieler Floquetzustände wurde von M. Dörr, R.M. Potvliege und R. Shakeshaft [SHA 90] bis in einen Intensitätsbereich von  $1,2 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$  berechnet. Diesen Rechnungen wurden für einen adiabatischen angenommenen Elektronenzustand ( hier ändert sich der atomare Teil des Floquet-Zustandes nur unwesentlich ) durchgeführt, so daß den Resonanzen im Energiespektrum gebundene Zustände zugeordnet werden können. Diese Modellrechnungen wurden mit den Meßergebnissen verglichen und eine hohe Übereinstimmung in Position und Breite der Maxima festgestellt [ DÖR 92 ] [ ROT 92 ] - lediglich die relative Signalthöhe zeigt teilweise erhebliche Diskrepanzen. Ursache für diesen Unterschied bei der Gegenüberstellung von Messung und Computersimulation ist die Einschränkung der Rechnung auf jeweils einen Intensitätswert. Der reale Laserpuls aber setzt sich aus einem kontinuierlichen Intensitätsverlauf zwischen Null und dem Maximalwert zusammen, so daß für die theoretische Simulation eine Überlagerung von Spektren für unterschiedliche Intensitäten erforderlich ist. Diese gewichtete Addition von Einzelspektren ist insofern sehr problematisch, da sich die Gewichtung auf einen Flächenanteil vom Gesamtprofil des Pulses bezieht und das räumliche Profil des Pulses nur ungenügend bekannt ist.

Ergebnisse von Gontier et al. [GOT 89] [GON 90] [GON 92], die nicht auf dem störungstheoretischen Ansatz basieren, können bei der Identifikation der Hauptquantenzahl der beteiligten Zustände herangezogen werden. Für  $n \geq 4$  verschieben die atomaren Zustände genähert parallel mit der Ionisationsgrenze, so daß allein anhand der Position des Elektronen-

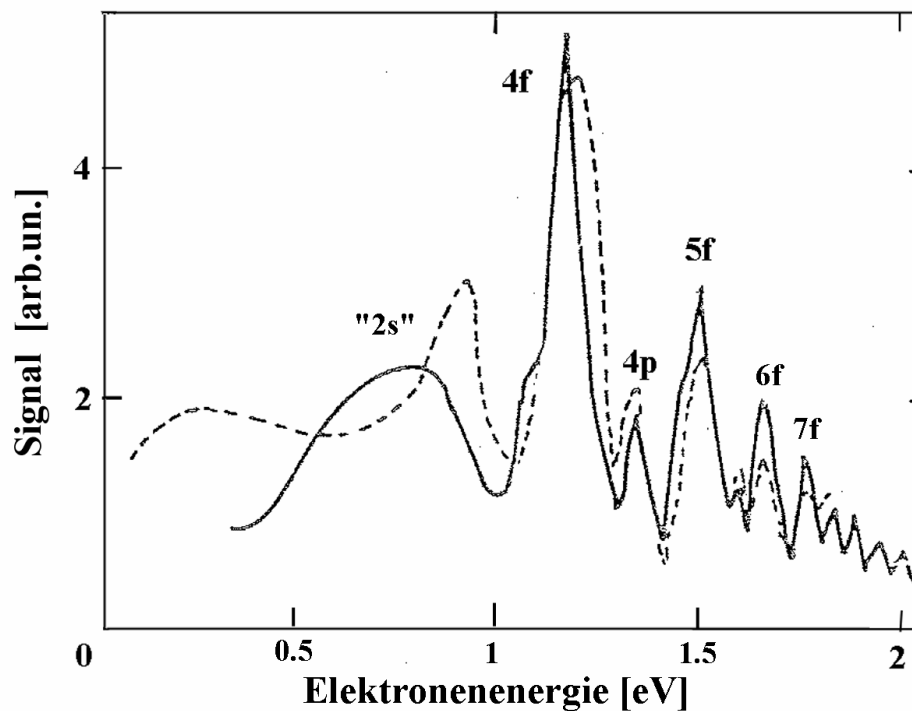


Bild 24.2 : zeigt das Elektronenspektrum eines ATI Prozesses für  $S = 0$  von atomarem Wasserstoff bei einer Wellenlänge von 608 nm und einer Pulsdauer von 0,4 ps. Die Intensität liegt im Bereich von  $10^{14} \text{W/cm}^2$  [FEL 90]. Die Maxima korrespondieren mit Resonanzen der Starkshift verschobenen angeregten Zustände, die gestrichelte Linie ist eine Modellrechnung von M. Dörr, R.M Potvliege, R. Shakeshaft. [SHA 90].

maxima eine Energiebilanz aufgestellt und die Hauptquantenzahl der beteiligten Zwischenzustände bestimmt werden kann : subtrahiert man von den Peak-Elektronenenergien ganzzahlige Vielfache der Photonenenergie, so ergeben sich die zugehörigen Bindungsenergien. Bei diesem Vorgehen kann eine gute Übereinstimmung insbesondere für die dominante 4f und „2s“-Resonanz bestätigt werden wobei die Partialwellenanalyse der Winkelverteilungen eine genauere Spezifikation erlaubt, vgl.Kap. 4.1.

In diesem Zusammenhang muß eine Besonderheit des gemessenen Spektrums angesprochen werden. Beginnend bei einer Intensität von etwa  $6 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$  wird eine Serie von Elektronenmaxima – „Extra-Peaks“ – nahe der Photonenenergie sichtbar, vgl. Bild 24.3, deren Identifikation auf außerordentliche Schwierigkeiten stößt [FEL 92]. Da die energetischen Abstände der Maxima gerade der Photonenenergie entsprechen, kann ein ATI – Prozeß angenommen werden. Die gewohnte Methode, durch wiederholte Subtraktion der Photonenenergie eine Resonanz im ersten Ionisationskanal ( $E < \hbar\omega$ ) zu finden, führt hier zu keinem Ergebnis. Erste Interpretationsversuche dieses offenbar neuen Prozesses gründeten auf „Wigner-Cusps“, die F.H.M.Faisal et al. [FAI 92] für negative Ionen in starken Feldern berechnet hat. Es werden hier für hohe Intensitäten zusätzliche Peaks vorausgesagt, die beim Vielfachen der Photonenenergien auftreten sollen. Ursprung dieser Wigner - Cusps sind

neue Kanäle der stimulierten Bremsstrahlung, die sich für hohe Intensitäten etablieren - allerdings ist bei der Übertragung dieses Modells auf neutrale Atome zu berücksichtigen, daß hier viele Rydberg-Zustände existieren, die an der Ionisationsgrenze konvergieren. Statt einer stimulierten Bremsstrahlung führt diese Situation zu einer stimulierten Rekombination.

Ein weiterer Lösungsvorschlag kam von M. Dörr et al. [DÖR 90b,c] unter Benutzung der Floquet Theorie: ausgehend von der Gesamtionisationsrate des Grundzustandes ergibt sich bei

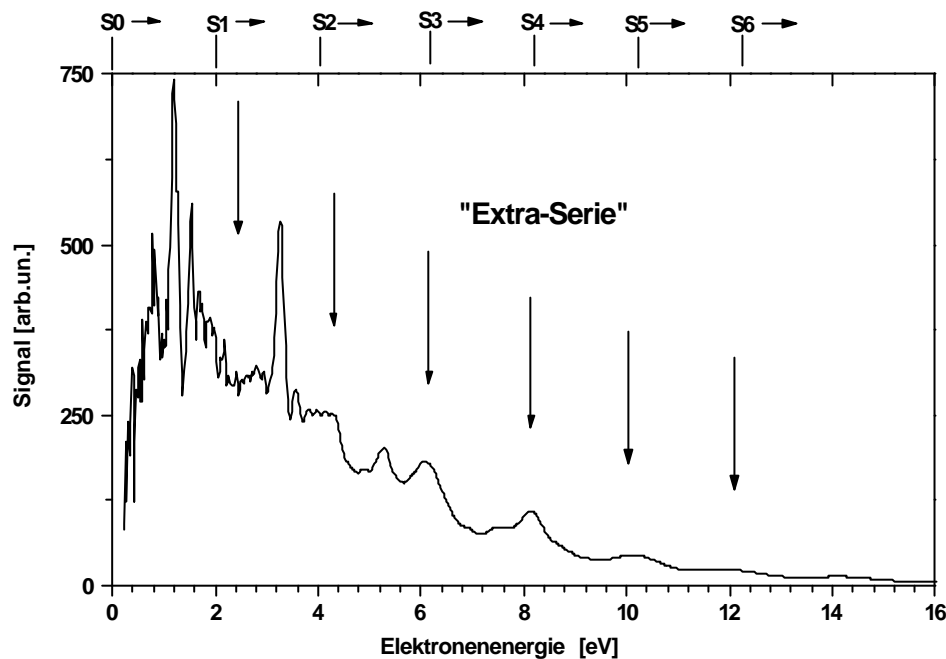


Bild 24.3 : zeigt ein während der aktuellen Messungen aufgenommenes Wasserstoff-Elektronenspektrum, bei dem die bereits von Rottke gemessene Extra-Serie verifiziert werden konnte. ( 610 nm, 400 fs,  $1,2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  )

einer Intensität von  $\approx 6 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$  ein schneller Anstieg der Ionisationsrate, der bei  $7 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$  in ein Plateau übergeht. Ein intensiver Laserpuls,  $8 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$ , kann bereits in der Anstiegsflanke eine deutliche Zunahme der Ionisation bewirken, so daß es bei der Maximalintensität zu einer Ionisationssättigung kommt. Diese wird als breites Signal vor der Schwelle der 8-Photonenionisation im Elektronenspektrum sichtbar und jeweils bei ganzzahligem Vielfachen der Photonenenergie als Signalmaximum identifiziert.

Die dritte Hypothese, von D. Feldmann et al. vorgeschlagen [FEL 92], geht von der verstärkten Ionisation eines wiederkehrenden Wellenpakets aus. Während der ansteigenden Flanke des Laserpulses können, nachdem die entsprechenden Zustände durch den Starkshift in Resonanz geschoben wurden, hohe Rydberg - Zustände angeregt werden, vgl. Bild 24.4. Die Ionisation dieser Zustände durch ein Photon ist außerordentlich unwahrscheinlich, insbesondere, wenn sich dieses Rydberg - Wellenpaket vom Kern entfernt. Teile dieses Ryd-

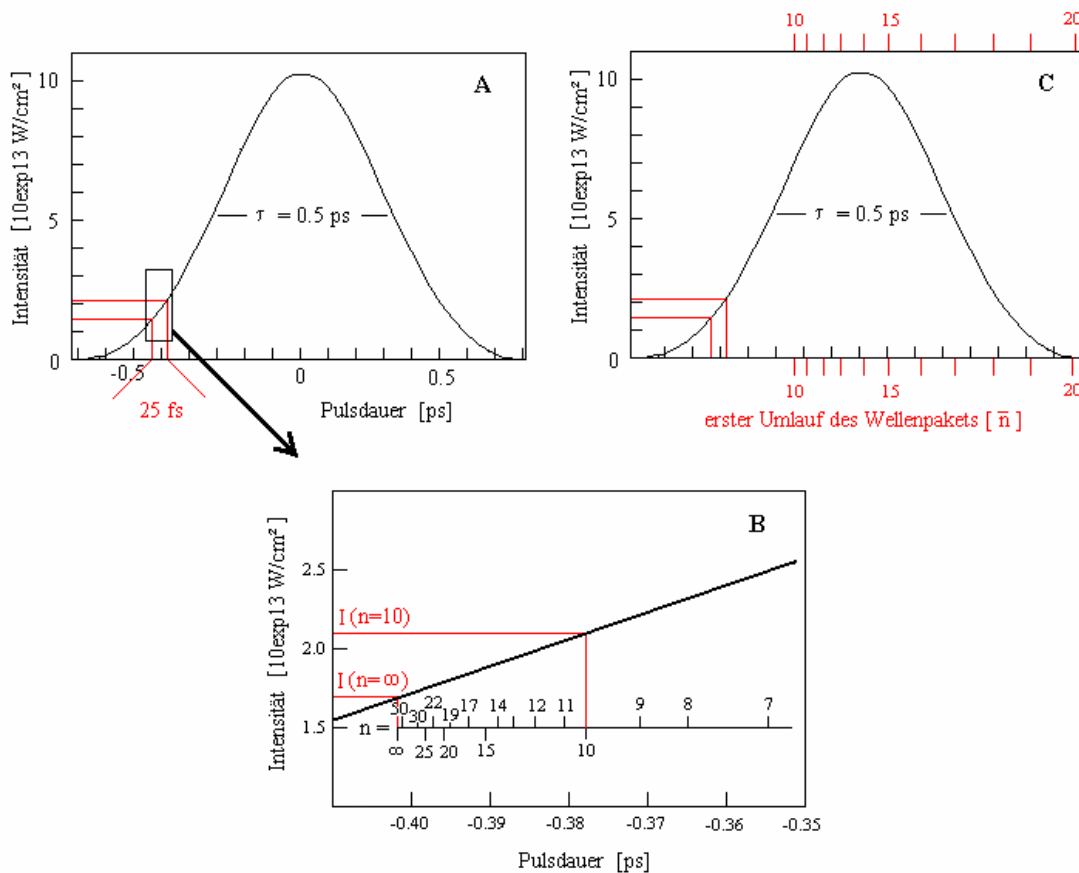


Bild 24.4 [ FEL 92 ]: [ A ] zeigt einen 500 fs Laserpuls mit zeitlichem Gauss- bzw.  $\text{sech}^2$  Profil. In dem Intensitätsintervall der ansteigenden Flanke „schiebt“ der AC Starkshift hohe Rydbergzustände in die 7-Photonenresonanz. [ B ] Dieses Bild zeigt den Bereich aus [ A ] vergrößert und verdeutlicht, wie die Hauptquantenzahl der angeregten Rydbergzustände von der Intensität des Pulses abhängt. [ C ] Hat das Rydberg-Wellenpaket den ersten Umlauf beendet, so zeigt die Quantenzahl  $\bar{n}$  die zeitliche Position relativ zum Laserpuls.

berg-Wellenpakets mit niedriger Hauptquantenzahl kehren während des Zeitraums maximaler Intensität des Laserpulses zum Kern zurück, absorbieren Photonen und erzeugen ein ATI Spektrum. Geht man zudem von dem Modell von Freeman, Mainfray und Agostini aus, so werden hohe Rydberg-Zustände (ungerader Parität, Drehimpulsquantenzahl  $l < 7$ ) mit einer 7-Photonenabsorption, beginnend bei einer Strahlungsintensität von  $1.65 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$ , in Resonanz geschoben. Die Hauptquantenzahl der Rydbergzustände umfaßt den Bereich von  $n = 10$  bis  $n \rightarrow \infty$ . Für die Spezifikationen des „Bielefeld-Experiments“ wäre die Hauptquantenzahl des Zustandes, der nach dem ersten Umlauf in das Zeitfenster der maximalen Intensität des Lasers zurückkommt,  $\bar{n} = 14$ . Da diese Zustände mit  $n > 10$  parallel zur Ionisationsgrenze starkverschoben werden, erscheint das Elektronensignal nahe  $S\hbar\omega$ .

Ist beispielsweise die Quantenzahl  $\bar{n} > 18$ , so erreicht das Wellenpaket den Kern erst nach dem Laserpuls mit der Konsequenz, daß eine Ionisation nicht stattfindet und diese Rydberg-

Zustände den MPI-Prozess „überleben“. Um dieses Modell zu verifizieren, kann der Nachweis von Atomen in Rydbergzuständen nach dem Laserpuls ein Indiz für das Zutreffen dieses Modells sein, vgl. Kap. 4.2.

Eine hier anschließende Simulation für die Anregung kohärenter Wellenpakete wurde von H.J. Stiemke [STI 95] aus der Arbeitsgruppe von F.H.M. Faisal gerechnet, vgl. Bild 24.5 (und Kap 4.1.3). Um den realen Laserpuls nachzubilden, ist eine additive Überlagerung von Einzelspektren für unterschiedliche Laserintensitäten erforderlich, hier sind es die Intensitäten  $4.5$ ,  $5.9$ , und  $7.7 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$ , um das Raumprofil des Pulses nachzubilden. Bei der vorgenommenen, gleichgewichteten Addition treten neben den diskutierten Resonanzen doppelte Elektronenmaxima auf, die bei ganzzahligen Vielfachen der Photonenenergie erscheinen. Da es für diese Rechnung eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen energetischen Positionen der „Extra-Peak-Serie“ gibt, liegt eine Interpretation dieser Simulation als „Extra-Peak-Serie“ nahe. Einen wichtigen Hinweis auf beteiligte Drehimpulse geben die Winkelverteilungen dieses Modells, vgl. Teilabbildung in 24.5, in der für die „Extra-Peak-Serie“ keine Seitenmaxima neben der gestreckten keulenartigen Grundform existieren und daher auf eine Überlagerung sehr hoher Drehimpulswerte geschlossen werden kann. – Im Kapitel 4.1.3 werden Experimente zu dieser Fragestellung diskutiert.

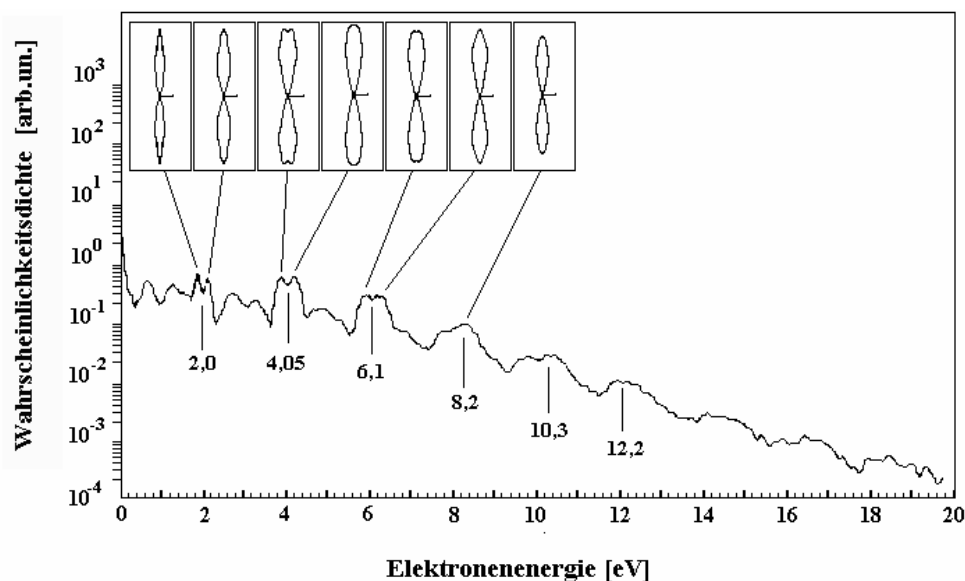


Bild 24.5: Das Bild zeigt die additive Überlagerung der drei Einzelspektren des atomaren Wasserstoffs zu den Intensitäten  $4.5 \times$ ,  $5.9 \times$  und  $7.7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  bei  $608 \text{ nm}$  [STI 95]. Die markierten Elektronensignale zeigen eine gute Übereinstimmung mit den Positionen der „Extra -Peak-Serie“ des Experiments.

## 3 Das Experiment

Der experimentelle Aufbau setzt sich aus einer Ultrahochvakuumapparatur, einem Lasersystem und der elektronischen Signalerfassung und Signalverarbeitung zusammen. Mit diesem Aufbau sind bereits Messungen gemacht worden, die unter dem Namen „Bielefeld Experiment“ in der Literatur zu finden sind [BI-EX] – auch hier kam das Farbstofflasersystem mit 10 Hz Repetitionsrate, einer Pulsdauer von 400 fs bei Wellenlängen um 600 nm zum Einsatz, mit dem Multiphotonenprozesse an atomarem Wasserstoff und Edelgasen untersucht wurden.

Diese Untersuchungen wurden dann von mir mit verändertem bzw. erweitertem Aufbau für die Bearbeitung einer neuen Thematik fortgeführt. Die wesentlichen Modifikationen betreffen das Lasersystem und die Signalverarbeitung, die durch den Einsatz einer PC unterstützten Signalauswertung und eines leistungsfähigen Meßprogramms eine Online - Datenanalyse erlaubt. Die Verstärkerkette des Farbstofflasersystems wurde um eine Bethunezelle erweitert, die eine Leistungserhöhung durch effektivere Nutzung der Pumpstrahlung ermöglicht. Diese Leistungserhöhung um den Faktor 5 eröffnete nun die Möglichkeit, den Multiphotonenionisationsprozeß bei höheren Intensitäten und als grundsätzliche und wesentliche Neuerung unter Verwendung zweier Wellenlängen zu untersuchen.

### 3.1 Die Vakuumapparatur

Die Ultrahochvakuumapparatur, vgl. Bilder 31.1 und 31.4, besteht aus einem Behälter, der mit den gängigen Edelstahl – UHV ( CF-Norm DN 100 ) Komponenten, Cu-gedichtet aufgebaut ist. Eine Detektoreinheit bildet an einer Seite den Abschluß der Apparatur und ist durch die anschließende Flugstrecke vom Wechselwirkungsbereich getrennt. Diese Wechselwirkungszone kann durch zwei horizontal angeordnete, gegenüberliegende Fenster von der fokussierten Laserstrahlung erreicht werden. Unter einem Winkel von 45 Grad zu Laserachse ist oberhalb des Rohres der Gaseinlaß für die Versorgung mit atomarem Wasserstoff positioniert, so daß der Teilchenstrahl mit der Laserachse kreuzt. Ein abschließender Edelstahlflansch führt zu einer Ionisationsmeßröhre Leybold IE 511 und senkrecht zu der im Abstand von 50 cm nach unten befestigten doppelflutigen Turbomolekularpumpe, Typ Pfeiffer – Balzers TPU 330. Diese Distanz der Pumpe ist notwendig, um mögliche Einflüsse der magnetischen oder elektrischen Felder des



Pumpenmotors auszuschließen. Dieser Aufbau ist schematisch in Bild 31.1 und 31.4 zu sehen. Eine zweistufige Drehschiebervorpumpe Leroy/Somer Typ LS 602 mit Adsorptionfilter und Wärmeleitungsmeßröhre Leybold TR 201, zur Messung des Vorvakuumdrucks, komplettieren das System.

Im ausgeheizten Zustand (ca. 120 Grad Celsius, 18 Std. ) wird ein Enddruck von etwa  $2 \times 10^{-9}$  mbar erreicht.

Sowohl bei dem erreichten Enddruck ( $2 \times 10^{-9}$  mbar ) als auch bei dem typischen Kammerdruck während der Messung ( $4 \times 10^{-6}$  mbar ) wurde eine Restgasanalyse mit dem Massenspektrometer und mittels der Multiphotonenionisation durchgeführt. Die durch den Laserpuls ionisierten Atome wurden durch die Flugzeit separiert und dem erhaltenen Spektrum Massenzahlen zugeordnet. Die Meßdaten, Bild 31.3, geben die Verhältnisse der Restgase in der Vakuumkammer wieder. Der Hintergrund für die Ermittlung dieser Daten ist es, mögliche Verfälschungen von Meßdaten eines speziellen Gases durch die Detektion von Elektronen abzuschätzen, die nicht Folge des zu untersuchenden Multiphotonionisationsprozeß sind.

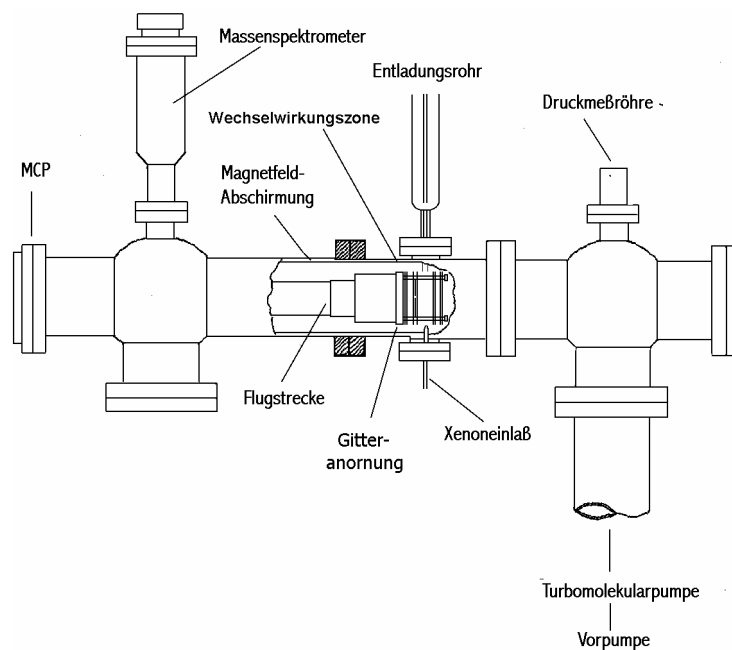


Bild 31.1 : Der Aufbau der Ultrahochvakuumapparatur

Die für die Herstellung atomaren Wasserstoffs erforderliche Wasserstoffdissoziation wird mit einer Mikrowellenentladung realisiert [BRO 64] [BRO 79]. Ein Mikrowellengenerator

Typ Microtron 200 emittiert über einen Resonator etwa 100 W Mikrowellenleistung mit 2,45 GHz in ein mit Isopropanol gekühltes Quarzglasrohr. Das beim Dissoziationsprozeß entstehende Streulicht wird durch die rechtwinklige Konstruktion sowie zweier Woodscher Hörner nahezu vollständig unterdrückt [WEI 78].

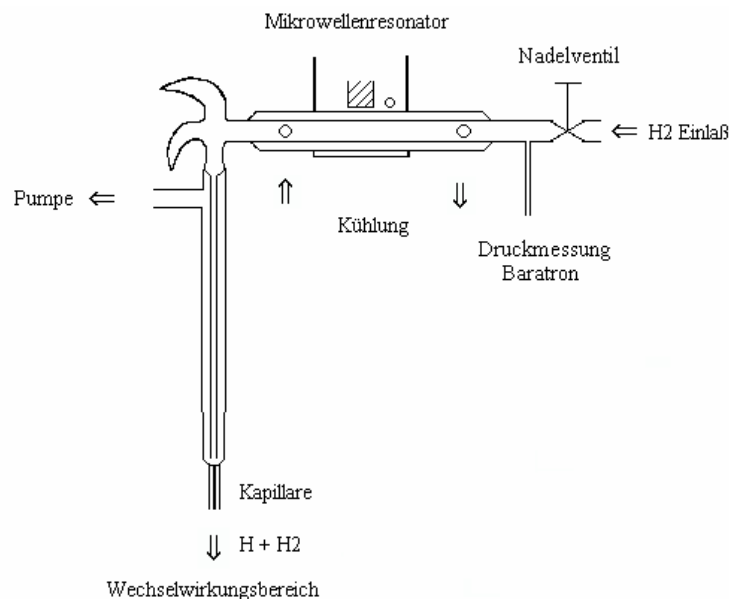


Bild 31.2: Aufbau der Mikrowellendissoziation für Wasserstoff

Dieses Rohr, dessen Innenwandung für eine minimale Rekombination mit Orthophosphorsäure beschichtet ist, endet in einer 25 mm langen Kapillare mit ca. 0,5 mm Innendurchmesser, angepaßt an die Saugleistung der Vakuumapparatur. Diese Anpassung des Kapillardurchmessers an die Pumpkapazität der Hauptkammer ist notwendig, da die Entladung nur innerhalb enger Toleranzen bezüglich Wasserstoffvordruck und Mikrowellenleistung die maximale Dissoziation erreicht.

Vor dieser Kapillare, innerhalb des Dissoziationsrohres, ist ein gepumpter Gasabfluß angebracht, um in diesem Bereich einen Gasstau und die damit verbundene Rekombination zu verhindern. Eine weitere Vorpumpe, Typ Leroy/Somer HLS 63, ebenfalls mit Adsorbtiionsfilter, wird zur Evakuierung der Gasversorgung der Wasserstoff - Mikrowellenentladung genutzt.

Die Glaskapillare steht frei von der Wand der Vakuumkammer bis in die Mitte der Wechselwirkungszone, mit ihrer Öffnung etwa 20 mm vom Laserfokus entfernt. In diesem Bereich verhindert eine äußere Graphitbeschichtung der Glaskapillare eine elektrostatische Aufladung und somit die Bildung eines Oberflächenpotentials im Wechselwirkungsbereich.

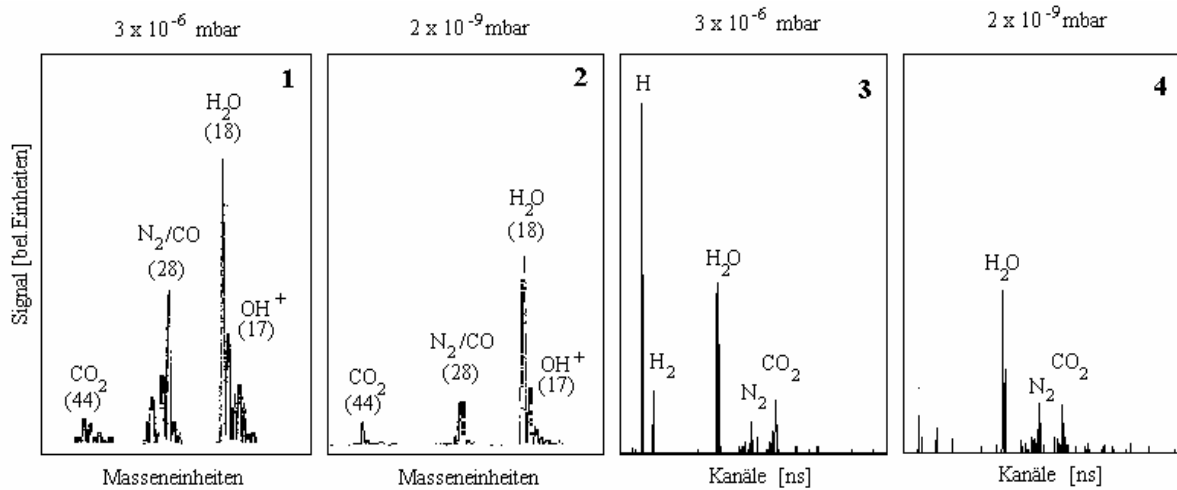


Bild 31.3 : Massenspektrum mit eingeschalteter Wasserstoffentladung mit Quadrupolmassenspektrometer (1) und mit Multiphotonenionisation erzeugten Ionen (3) detektiert. Im ausgeheizten Zustand erstelltes Massenspektrum mit QMS (2) und mit MPI (4)

Der austretende Atomstrahl hat am Kapillarende, bei einem Vordruck von 800 mbar  $H_2$  (Reinheit 5.8), eine Dichte von etwa  $3 \times 10^{10}$  Teilchen pro  $cm^3$  [ ROT 82 ], entsprechend einem Kammerdruck während der Messung von  $3 \times 10^{-6}$  mbar. Der Anteil der Wasserstoffatome wird mit 50% abgeschätzt, basierend auf einer Multiphotonenionisationsmessung, bei der das Ionenverhältnis bei ein- und abgeschalteter Entladung bestimmt wurde, vgl auch Bild 31.3. Eine Berechnung des Dissoziationsgrades ist aufgrund der unbekanntenen Strömungsverhältnisse in der Kapillare und der Gasmischung H und  $H_2$  nicht exakt möglich [ WOL 89 ] und so ist die mittlere Teilchendichte am Laserfokus anhand der folgenden Formeln 31-1 bis 31-4 abgeschätzt worden [ GIO 60 ]. Das Ergebnis dieser Rechnung für die Größenordnung der Dichte des Atomstrahls ist  $\sim 10^{10}$  Teilchen pro  $cm^3$ .

Unter der Voraussetzung eines konstanten Drucks in der Kapillare :

$$\frac{V}{t} = \frac{N}{t} \hat{p}kt \quad (31-1)$$

gilt für die Teilchenzahl pro Sekunde

$$\dot{N} = \frac{p}{8hkT} \frac{a^4}{L} \hat{p}(p_1 - p_2) \quad (31-2)$$

und für die Teilchenzahl in Richtung der Kapillarachse ( $\Theta = 0$ )

$$I(\Theta = 0) = \frac{\sqrt{3\hat{c}a\dot{N}}}{8^4\sqrt{2}\sqrt{p}} \frac{1}{s} \quad (31-3)$$

Die Teilchenzahl im Wechselwirkungsbereich ist

$$N = \frac{I(\Theta = 0)}{r^2\hat{c}} \quad (31-4)$$

$\dot{N}$ : Teilchenzahl pro Sekunde,  $\eta$ : Viskosität,  $L$ : Kapillarlänge,  $\hat{p}$ : mittlerer Druck in der Kapillare,  $a$ : Durchmesser der Kapillare,  $I$ : Teilchenzahl pro Sekunde im Winkel  $\Theta$ ,  $\hat{c}$ : mittlere Geschwindigkeit der Teilchen,  $\sigma$ : Durchmesser der Teilchen,  $r$ : Abstand der Kapillare vom Laserfokus,  $V$ : Volumen,  $p_1$ : Druck Gasvorlauf,  $p_2$ : Druck zum Vakuum

Der eigentliche Wechselwirkungsbereich, siehe Bild 31.4, ist durch zwei Gittergruppen im Abstand von 20 mm, jeweils bestehend aus zwei Doppelgittern im Abstand von 7 mm, begrenzt. Diese Molybdängitter haben die Aufgabe, den Wechselwirkungsbereich zwischen Laserstrahlung und dem zu untersuchenden Gas elektrisch von der Flugstrecke zu isolieren. Die charakteristischen Größen dieses Gitters ( Gitterweite  $W = 0,58$  mm und Drahtstärke  $d = 0,04$  mm ) sind so gewählt, daß die zu detektierenden Teilchen diesen Bereich weitgehend ungehindert passieren können, aber trotzdem der Felddurchgriff für ein potentialfreies Flugrohr hinreichend klein ist.

Dieses Konzept ermöglicht aber auch die Erzeugung eines Feldgradienten zwischen diesen beiden Gittergruppen. Es ist nun möglich, die zu detektierenden Teilchen in einem Feld entstehen zu lassen und sie dadurch zu beschleunigen. Diese Option ist unter anderem bei dem Nachweis von Ionen genutzt worden. So können alle geladenen Teilchen, unabhängig von ihrer Masse, d.h. ihrer Energie und auch unabhängig von der Polarisationsrichtung der Laserstrahlung in das Flugrohr beschleunigt werden.

In der Gittergruppe direkt vor dem Flugrohr ist zentrisch zwischen beiden Doppelgittern eine Blende mit 1.2 mm Durchmesser angebracht. Durch diese Reduktion der freien Öffnung des Flugrohres wird ein relativ kleines Volumen meßtechnisch erfaßt, so daß ausschließlich Prozesse aus dem Laserfokus detektiert werden können. Die rein geometrische Berechnung der Winkelauflösung führt zu einem Wert für das Raumwinkelelement von 0,04 Steradian.

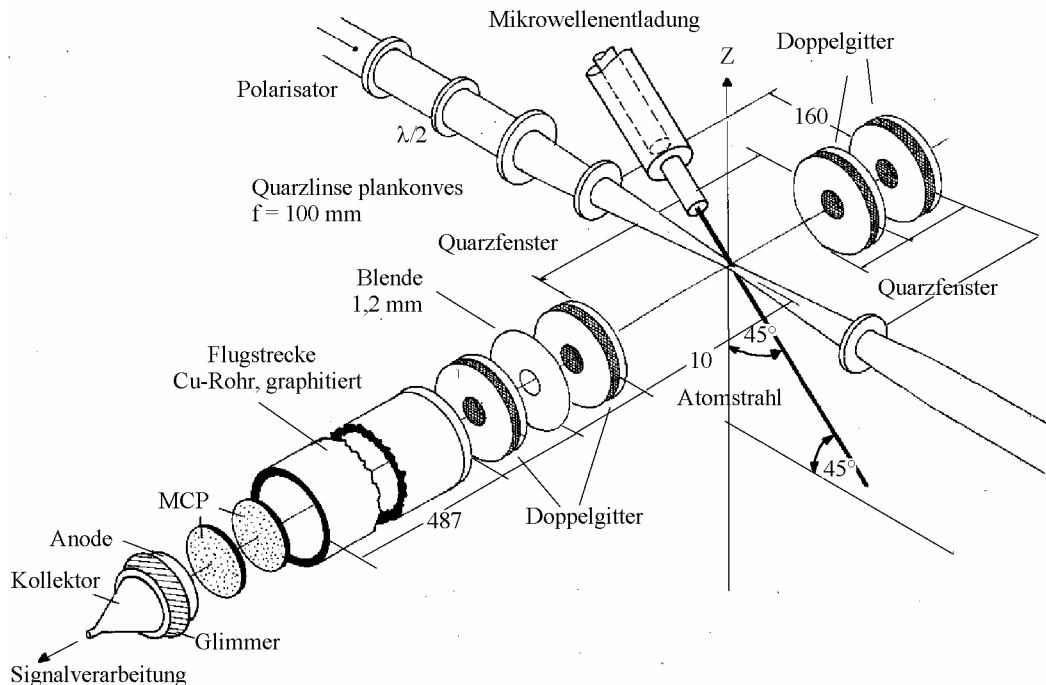


Bild 31.4 : Schematischer Strahlverlauf und Aufbau der Flugstrecke mit der Detektoreinheit

Die fokussierte Laserstrahlung erreicht durch vitongedichtete Quarzglasfenster im Vakuumbehälter und durch Bohrungen in der Mumetall - Magnetfeldabschirmung die Wechselwirkungszone. Der Fokus liegt bei der Untersuchung von Wasserstoff genau im Zentrum des Wasserstoffatomstrahls, der aus der Kapillare der Mikrowellenentladung, 45 Grad zur Laserstrahl geneigt, von oben in diesen Bereich einströmt.

Die Energieanalyse der Teilchen wird mit der Flugzeitmessung **TOF** ( **T**ime **O**f **F**light ) vorgenommen. Der Aufbau der Flugstrecke und des Strahlengangs ist in Bild 31.4 zu sehen. Ein graphitiertes Kupferrohr, Länge 487 mm bei einem Innendurchmesser von 45 mm, ist die feldfreie Flugstrecke, die einerseits durch eine Gittergruppe zur Wechselwirkungszone hin und auf der anderen Seite durch ein Gitter vor dem Detektor abgeschlossen ist. Ein Mumetallrohr, eine hochpermeable Metallegierung NiFe 15 Mo 5 (  $\mu_4 \approx 30000$  ), im Vakuumbehälter um das Flugrohr angeordnet, hat die Aufgabe, äußere Magnetfelder abzuschirmen. Die Reduktion des Erdmagnetfeldes ist mit 98,8 % sehr effektiv; es ist demnach noch ein magnetisches Restfeld von etwa 7 mGauss innerhalb der Abschirmung

vorhanden. Eine Abschätzung nach mit der Gleichung ( 31-5 ) für die Ablenkung der Elektronen im Flugrohr ergibt, daß ein weitgehend unbeeinflusster Flug der Teilchen bis zur Detektoreinheit gewährleistet ist.

$$r = \frac{\sqrt{2mE}}{qB} \quad (31-5)$$

r: Radius der Flugbahn, E: kinetische Energie, q: Ladung, B: Magnetfeld

Da der Startzeitpunkt der Elektronen durch den Laserpuls festgelegt ist, kann die Flugzeit zum Detektor eindeutig gemessen werden. Es ist für einen störungsfreien Nachweis dieser Elektronen vorauszusetzen, daß sie den Fokusbereich des Lasers unbeeinflusst verlassen und frei zum Detektor fliegen können. Auf dieser Flugbahn existieren allerdings experimentelle, bzw. apparativ bedingte Einflüsse wie Raumladungen, die durch zu viele Wechselwirkungsereignisse im Fokus verursacht werden können, Oberflächenpotentiale im Flugrohrbereich oder auch das bereits angesprochene Magnetfelder (Erdmagnetfeld ), die den präzisen Nachweis stören oder verfälschen können. Eine experimentell ermittelte Grenze sind etwa  $\approx 100$  Ionisationsereignisse pro Laserpuls, da höhere Zählraten eine Raumladungsverbreiterung verursachen und die Energieauflösung beeinträchtigen. Bei Repetitionsraten  $\leq 10$  Hz erfordert diese Bedingung eine hohe Nachweiseffizienz für eine ausreichende Statistik der Meßwerte. Die holländische Arbeitsgruppe von H.G. Muller [MUL 98] benutzt aus diesem Grunde eine magnetische Flasche, d.h. ein Flugzeitspektrometer, das einen Winkelbereich von  $2\pi$  sr erfaßt, dafür aber eine winkelselektive Messung unmöglich macht.

Wir haben einem feldfreien Nachweis den Vorzug gegeben, vgl. Bild 31.4, um die Option für die Messung einer Winkelverteilung nicht zu verlieren. Dabei ist es möglich, durch die Drehung der Polarisierung der Laserstrahlung die Winkelverteilung der emittierten Elektronen als Funktion des Polarisationswinkels zu bestimmen. Der Akzeptanzraumwinkel des Spektrometers ergibt sich aus Gesamtlänge und Detektorfläche bei einem idealisierten punktförmigen Entstehungsvolumen der Elektronen:

$$d\Omega = \frac{(p/4)d^2}{x^2} \quad (31-6)$$

mit x: Detektordurchmesser, d: Flugrohrlänge,  $d\Omega$ : Raumwinkelement

Da der Elektronen - Entstehungsort als punktförmig angenommen wird, muß eine Abweichung des Azimutwinkels  $\Theta$  beachtet werden:

$$\tan \Delta \Theta_D \approx \Delta \Theta_D = d / x \quad (31-7)$$

Ebenso ist es möglich, die Elektronen nach dem Verlassen des feldfreien Wechselwirkungsvolumens zu beschleunigen, um den geforderten Energiebereich detailliert darstellen zu können. Alle vorhandenen Gitter, Blenden sowie die Vielkanalplatten zusammen mit der Anode sind erdungs frei eingebaut.

Der potentialfreie Aufbau bietet auch die Möglichkeit, durch Anlegen einer zum Elektronennachweis umgekehrten Polarität Ionen zu erfassen. In dieser Konfiguration funktioniert die Flugstrecke als Massenspektrometer. Die Ionen werden mit einem elektrischen Feld in Richtung Detektor beschleunigt mit dem Ergebnis, daß Ionen gleicher Ladung gleiche kinetische Energien besitzen. Folglich haben Ionen mit unterschiedlicher Masse auch unterschiedliche Geschwindigkeiten und daher auch verschiedene Flugzeiten bis zum Detektor [PRE 84]:

$$t = T_H \sqrt{m_a} \quad (31-8)$$

mit  $t$ : Flugzeit einer beliebigen Masse,  $T_H$ : Flugzeit des Wasserstoffions,  $m_a$ : Masse des Teilchens in atomaren Einheiten

$$\Delta t = T_H (\sqrt{m+1} - \sqrt{m}) \approx \frac{1}{2} \frac{1}{\sqrt{m}} T_H \quad (31-9)$$

mit  $t$ : zeitliche Differenz zweier aufeinanderfolgender Massen  $m$  und  $m+1$

Die beobachtete Ionenmasse wird durch

$$m = t^2 / T_H \quad (31-10)$$

identifiziert, wobei die Flugzeit des Xenonions als Eichung fungiert.

Die Elektronenenergieauflösung der Flugstrecke hängt von der betrachteten Energie ab. Dieses Verhalten spiegeln die aufgenommenen Spektren deutlich wieder, denn die energetische Breite der detektierten Elektronenmaxima nimmt mit zunehmender Elektronenenergie sukzessiv zu :

$$t = \sqrt{\frac{m x^2}{2E}} \quad (31-11)$$

$$E = \frac{m x^2}{2t^2} \quad (31-12)$$

Die theoretisch maximale Energieauflösung der Flugstrecke ist :

$$\frac{dE}{E} = \sqrt{\frac{8E}{m x^2}} dt \quad (31-13)$$

t: Flugzeit,  $\mu$ : Teilchenmasse, x: Länge der Flugstrecke, E: kinetische Energie des Teilchens, dt: minimale Kanalbreite der elektronischen Signalaufnahme ( 2 ns )

Mit der Kanalbreite des Transientenrecorders von 2 ns ist die Energieauflösung :

$$\begin{array}{ll} E = 1\text{eV} & dE = 4,5 \text{ meV} \\ E = 2\text{eV} & dE = 13\text{meV} \\ E = 10\text{eV} & dE = 144\text{meV} \end{array}$$

Einschränkend für diese Rechnung ist die Möglichkeit einer Teilchendetektion im Schaltvorgang zwischen zwei Kanälen, die eine um den Faktor 2 verminderte Energieauflösung verursacht.

Es ist zu bemerken, daß bei dieser Abschätzung die experimentelle Situation nicht berücksichtigt worden ist: die Bestimmung des zeitlichen Nullpunktes der Signalaufnahme hinsichtlich des Triggerpulses, elektrische und magnetische Störfelder, Raumladungen im Fokusbereich, Durchmesser des Fokus ( ca. 70  $\mu\text{m}$  ), Akzeptanzwinkel der Signalaufnahme und die daraus resultierende Verlängerung der Flugbahn.



## 3.2 Das Lasersystem

Modengekoppelte Lasersysteme sind in der Lage, ultrakurze Pulse, d.h. Pulse im ps- bis fs-Bereich zu erzeugen. Eine wesentliche Technik, um diese Pulsdauern zu realisieren, ist der aktive, akusto-optische Modulator oder die passive Kopplung mit einem sättigbaren Absorber - oder eine Kombination aus beidem. Ein aktiv modengekoppelter Nd:YAG Laser erreicht Pulsdauern im Bereich um 100 ps. Farbstofflaser aber sind infolge ihrer hohen Bandbreite geeignet, noch kürzere Pulse zu erzeugen. Dabei werden mit dem synchronen Pumpen des Farbstofflasers und anschließendem sättigbaren Absorber die Pulse bis in den Bereich von Subpikosekunden verkürzt. Aufgrund der großen Emissionsquerschnitte der Farbstoffe kommt es bei der Verstärkung sehr schnell zu einer Sättigung, weil die Sättigungsenergie etwa  $1 \text{ mJ/cm}^2$  beträgt. Mehrstufige Verstärkerketten sind daher erforderlich, um Pulsenergien von einigen Millijoule erzeugen zu können. Das in unseren Messungen eingesetzte Lasersystem, das im folgenden beschrieben wird, basiert auf den angesprochenen Techniken, vgl. Bild 32.1.

Ein YAG – Laser, Typ Coherent Antares 76s, akusto-optisch modensynchronisiert, mit einer Wiederholfrequenz von 76 MHz bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 1064 \text{ nm}$  wird in einem KTP- Kristall frequenzverdoppelt. Die emittierte, vertikal polarisierte Strahlung hat nun eine Wellenlänge von  $\lambda = 532 \text{ nm}$ , eine Leistung von ca. 2 Watt bei einer Pulsdauer von 70 ps. Mit einer IR-Diode, Antel AR-S2, wird ein kleiner Teil des  $\lambda = 1064 \text{ nm}$  Laserpulses aufgenommen, einer Samplingeinheit ( Tektronix ) mit anschließendem Oszilloskop zugeführt und damit die zeitliche Pulsform dargestellt. So kann der Laserresonator online über Positionsänderung des Auskoppelspiegels optimiert werden.

Der folgende, hybrid-synchron gepumpte Farbstofflaser Typ Coherent 702-1 wird von dem beschriebenen YAG- Laser gepumpt, wobei für das synchrone Pumpen die Resonatorlänge des Farbstofflasers, 1970 mm mit 30  $\mu\text{m}$  Verstellbereich, an die des YAG-Lasers angepaßt wird. Nach Durchlaufen eines Lyot Filters, der die zur vollständigen Modenkopplung nötige Wellenlänge selektiert, wird der Laserpuls in einem Absorberjet auf eine Pulslänge von 0,5 ps reduziert. Mit einem Autokorrelator werden diese Pulse ständig dargestellt und können über die Justage der Resonatorlänge des Farbstofflasers korrigiert werden [HAL 80]. Diese Pulse, deren Leistung im Bereich von  $10^{-9}$  Joule liegen, gelangen nun in die anschließende Verstärkerkette des fünfstufigen Farbstofflasersystems.

Dieses Farbstofflasersystem, bestehend aus 3 Rechteckküvetten einer Bethunezelle [ HEI 93 ] [ BRI 90] und zwei sättigbaren Feststoffabsorbern Typ Schott RG 645 [ MIG 82 ], verstärkt den aus dem Coherent 702-1 Farbstofflaser kommenden Puls um den Faktor  $1,1 \times 10^6$ . Der Laserpuls hat nun eine Energie von ca. 2,5 mJ, eine Wellenlänge von  $\lambda = 610 \text{ nm}$ , eine Pulsdauer von 400 fs und einen Strahldurchmesser von 16,7 mm.

Als Pumplaser für diese fünfstufige Verstärkerkette fungiert ein mit einem Diodenlaser stabilisierter (geseedeter), gütegeschalteter YAG – Laser Typ Continuum YG 661-10. Dieser Laser emittiert einen schmalbandigen, zeitlich gaussförmigen Laserpuls nahe dem Fourier-Limit, der in einem KDP-Kristall frequenzverdoppelt eine Wellenlänge von  $\lambda = 532$  nm, 6 ns Pulslänge, 360 mJ Leistung und 10 Hz Repetitionsrate hat und den Laser mit einer vertikalen Polarisation verläßt. Sein gleichmäßiges Strahlprofil, das keinerlei Leistungsspitzen (Spiking) aufweist, führt zu einem verbesserten Pulsdauer-Bandbreite Produkt [HER 84] und ist somit, verbunden mit der zeitlichen Stabilität – einer Verschiebung (Jitter) von  $1 \times 10^{-9}$  sec - für den Pumpvorgang besonders geeignet.

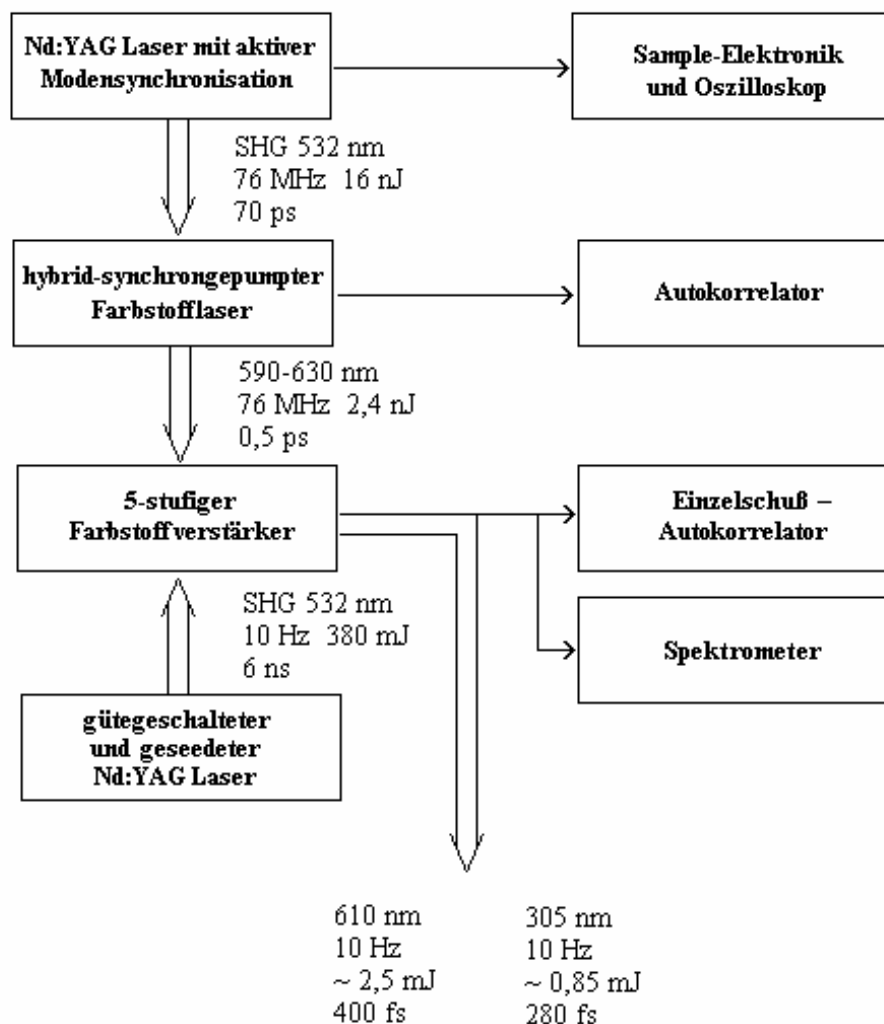


Bild 32.1 : zeigt schematisch den gesamten Aufbau des Lasersystems mit den entsprechenden Daten

Ein wichtiger Schritt ist die Synchronisation dieses 10 Hz Pumplasers auf die 76 MHz Pulsfolge des Coherent-Farbstofflaser. Ausgangspunkt dieser äußerst sensiblen Abstimmung ist der Hochfrequenzoszillator, der die opto-akustischen Modenkopplung des zuerst beschriebenen Coherent Antares 76s Lasers steuert. Eine Koinzidenzschaltung koppelt den Güteschalter des 10 Hz Pumplasers an diese vorgegebene Pulsfolge des Hochfrequenzoszillators mit einer zwischengeschalteten Regelelektronik Typ Lions P6 73N an. Mit Hilfe dieser Elektronik kann die Steuerung des Güteschalters des 10 Hz Pumplasers und die Anpassung der unterschiedlichen Weglängen des Pumpulses zu den Verstärkerzellen durchgeführt werden.

Die Bandbreite der verstärkten Laserpulse wird anschließend mit einem Spektrometer mit optischem Vielkanalanalysator gemessen und die Pulsenergie mit einem Leistungsmeßgerät Sciencetech 362 zusammen mit einem Meßkopf mit Volumenabsorber bestimmt.

Um die Information über das zeitliche Profil des Pulses zu erhalten, folgt eine Analyse mit dem Einzelschuß - Autokorrelator [ PLA 90 ] [ HEI 93 ]. Dieses von W. Pläß aufgebaute System ist eine indirekte Meßmethode, bei der das Signal einer Faltung mit sich selbst unterzogen wird, experimentell also eine Überlagerung des Originals des Pulses mit seiner

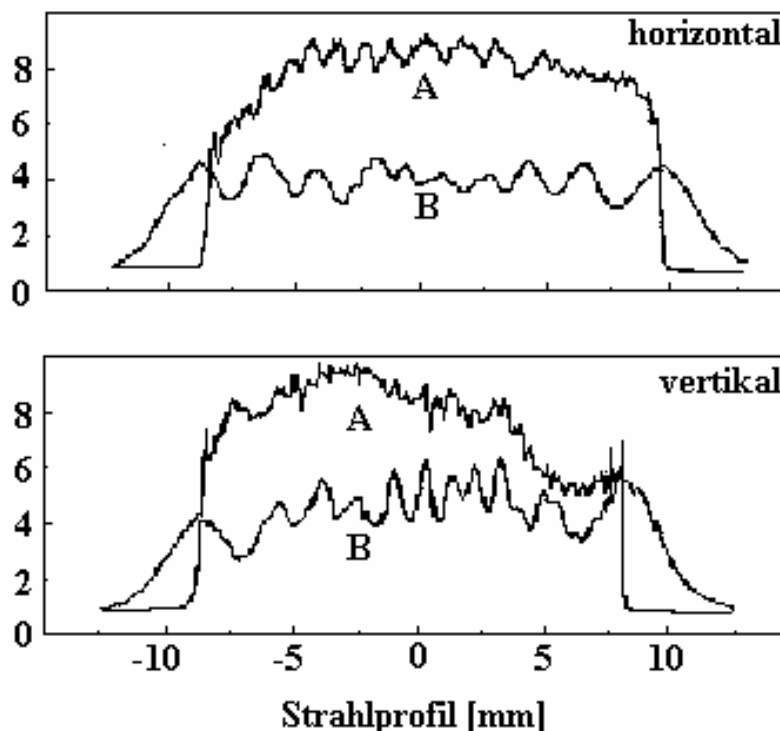


Bild 32.2: Messung des horizontalen und vertikalen Strahlungsprofils des Ultrakurzzeit-Laserpulses. A: das Profil im Nahfeld in 1 m Entfernung von der Bethuneezelle B : im entfernteren Feld ca.13 m Abstand [HEY 93]

zeitlich verzögerten und vervielfältigten Kopie. Das entstehende Produktsignal, die 2. Harmonische, wird mit einer Diodenzeile ausgelesen, von einem Rechner ausgewertet und anschließend mit gerechneten Autokorrelationsfunktionen graphisch verglichen. Die Halbwertsbreite der Autokorrelationsfunktion ist durch einen Proportionalitätsfaktor  $\alpha$  mit der Halbwertsbreite des Pulses verbunden – in diesem Fall mit einer zeitlichen  $\text{sech}^2$  Intensitätsverteilung – die zu einem  $\alpha = 0,648$  [SAL 80] und zu einer Abschätzung der Pulsdauer von 400 fs führt.

Als weitere Charakterisierung des Laserpulses, mit dem die Untersuchungen durchgeführt werden, ist das räumliche Strahlprofil sowohl im Nah- als auch im entfernteren Feld von großer Bedeutung. Dieses Profil, maßgeblich für die Fokussierbarkeit und für die im Fokus erreichbare Intensität, ist mit einer Diodenzeile aufgenommen worden und zeigt das horizontale und das vertikale Profil, vgl. Bild 32.2, daß als ein „Kastenprofil“ charakterisiert werden kann. Im Fokus ist eine Beschreibung der Intensitätsverteilung mit der Airy – Funktion eine gute Näherung.

Die Intensitätsbestimmung im Fokus ist durch die Separation von räumlicher und zeitlicher Komponente möglich:

$$I(x, y, z, t) = I_0 f(x, y, z) g(t) \quad (32-1)$$

mit  $I_0$ : Amplitude der Intensitätsverteilung,  $f(x, y, z)$  und  $g(t)$ : die normierte räumliche und zeitliche Intensitätsverteilungsfunktion.

Die Spitzenintensität im Fokus ist:

$$I_0 = \frac{\iiint I(0, y, z, t) dy dz dt}{\int g(t) dt \iint f(0, y, z) dy dz} \quad (32-2)$$

mit  $\iint f(0, y, z) dy dz = S_0$ : Querschnittsfläche des Laserstrahls im Fokus,  $\int g(t) dt = \tau$ : Pulsdauer  $\iiint I(0, y, z, t) dy dz dt = E_L$ : Laserenergie

Um die Rechnung zu vereinfachen, wurde statt einer Airy-Funktion ein räumliches Gauss-profil benutzt, um den Fleckradius zu berechnen, der für einen gemessenen Leistungsabfalls von 33 % an einer Lochblende mit 10  $\mu\text{m}$  Durchmesser im Fokus einer achromatischen plankonvexen Linse mit  $f = 100$  mm mit  $w \sim 7$   $\mu\text{m}$  bestimmt werden kann.

Die Kenngrößen des Femtosekunden – Lasersystems sind :

Ausgangsenergie des Verstärkers	2,5 mJ
Laserwellenlänge	610 nm
ASE – Anteil	< 2 %
Pulsdauer ( fwhm )	400 fs
Bandbreite ( fwhm )	2,9 nm
Pulsdauer–Bandbreite Produkt	0,68
Strahldurchmesser	17,0 mm
Strahldurchmesser im Fokus (f=100mm)	14 $\mu$ m
Spitzenintensität im Fokus (f=100mm)	$3 \times 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$

Ein sehr wichtiger Aspekt, der bisher nicht in die Betrachtung eingegangen ist, ist die Intensitätsschwankung des Lasersystems, die bei einem Flüssigkeitslaser und bei nicht gesättigter Verstärkung stattfindet. Verursacht durch den ungleichmäßigen Fluß der Farbstofflösung durch die Küvetten und der erwähnten nicht gesättigten Verstärkung kommt es zu einer prinzipiellen Fluktuation des erreichten Verstärkungsfaktors. Ebenso ist die Homogenität der Intensitätsverteilung über die Strahlfläche davon betroffen. Das Fazit dieses Verhaltens ist eine Schwankung der Laserleistung, die mit bis zu 15 % von Puls zu Puls variieren kann. Ein weiterer Effekt ist der „Langzeitdrift“ des Systems, der einen Zeitraum von einigen Stunden umfaßt. Unter diesem Langzeitdrift verstehe ich eine nur sehr bedingt korrigierbare thermische Bewegung der mechanischen Komponenten. Da alle Messungen dieses Experiments nichtlinear von der Strahlungsintensität abhängen, ist es erforderlich, diese Leistungsschwankungen für eine Auswertung zu berücksichtigen. Eine Möglichkeit dafür, die auch im Computerprogramm optional zur Verfügung steht, ist die leistungsabhängige Selektion der Spektren. Ein hinter der Vakuumkammer aufgestelltes Pyrometer kann die fokussierte Strahlung nach dem MPI-Prozeß aufnehmen und digitalisiert an den Rechner weitergeben. Hier erfolgt eine von der Laserintensität abhängige Zuordnung der aufgenommenen Spektren. Ein wesentliches Argument gegen diese Art der Messung ist eine große Verlängerung der effektiven Meßzeit vor dem Hintergrund, daß das Lasersystem den angesprochenen Langzeitdrift aufweist.

Um diesem Problem zu begegnen, habe ich eine analoge Aufzeichnung der Laserleistung aufgebaut. Ein Pyrodetektor gibt die Strahlungsleistung an eine Sample & Hold Elektronik weiter, sodaß das integrierte Signal von einem Schreiber dargestellt und der Leistungsabfall beurteilt werden kann. Auf den beschriebenen „Langzeitdrift“ kann kurzfristig mit einer Justage Lasersystems reagiert werden, aber letztlich nur durch den Abbruch der Messung. Die kurzfristigen, integral gemessenen Leistungsschwankungen von maximal 15% wurden von mir bei den Messungen zur Winkelverteilung und zur phasenselektiven Zweifarben-Multiphotonenionisation durch die rein statistische Maßnahme berücksichtigt, eine zufällige schnell variierende Abfolge der Winkelmeßpunkte innerhalb der Meßserie zu wählen.

### 3.3 Der elektronische Nachweis

Am Ende des Flugrohres werden die Teilchen von einer Detektoreinheit erfaßt, die als zweistufige **Multi Channel Plate (MCP)** – Anordnung (Typ Galileo 489-401-002,  $\varnothing = 40$  mm,  $5^\circ$  Bias) aufgebaut ist und durch ein Gitter, zur Verhinderung eines Felddurchgriffs, an die Flugstrecke anschließt, vgl. Bild 33.1. Es wird eine Signalverstärkung von  $>10^7$  erreicht. Ein nachfolgender schneller Vorverstärker Typ ESN – VT110, 200 MHz mit 200-facher Verstärkung ist kapazitiv an die Anode gekoppelt und gibt das Signal zu einem Diskriminator, UniBi FE 252, weiter. Dieser Diskriminator reduziert Untergrundsignale und generiert für jedes detektierte Elektron einen Einheitspuls mit der definierten Halbwertsbreite von 2 ns entsprechend der Schaltzeit des Transientenrekorders. Ein wichtiges Kriterium für eine fehlerfreie Funktion dieses Aufbaus ist, daß nur maximal ein Elektron pro Zeitkanal (2 ns) detektiert werden darf, denn der Diskriminator würde auch dann nur einen Normpuls entlassen, wenn mehrere Elektronen zur gleichen Zeit den Detektor treffen. Bei den durchgeführten Experimenten mit relativ schwacher Zählrate bis zu 5 Elektronen pro Laserschuß, die sich auf einen Zeitraum von vielen 100 ns verteilen, ist eine Sättigung in diesem Sinn auszuschließen.

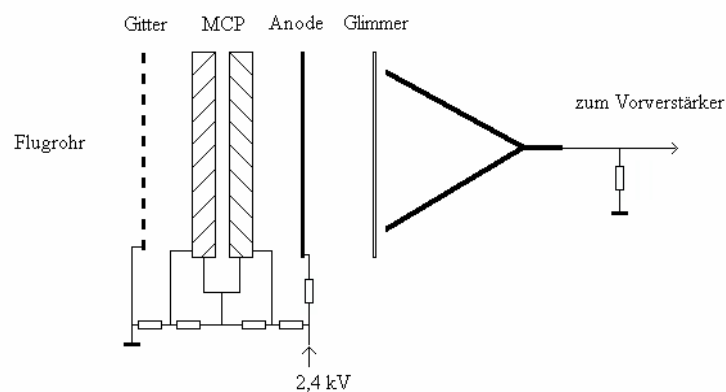


Bild 33.1 : Aufbau des Detektors mit zwei Mikrokanalplatten, einer Anode und eines kapazitiv entkoppelten Anschlusses

Das Signal wird nun von einem Transientenrekorder, Biomation Modell 6500 (1024 Kanälen, mit zeitlichem Abstand von je 2 ns, Abtastzeit pro Kanal ist 1 ns), digitalisiert und zeitlich aufgelöst gespeichert. Ausgelöst wird jeder Meßzyklus dieses Rekorders durch den Startpuls einer Fotodiode, die auf das Streulicht des Lasers reagiert. Die detektierten Ereignisse werden anschließend an einen ebenfalls durch den optischen Startpuls angesteuerten PC übergeben, der die Einzelspektren (pro Laserpuls) einer Meßsequenz aufsummiert. Verursacht durch die außerordentlich kleine Zählrate kann erst nach einer

solchen Addition ein profiliertes Elektronenspektrum erzeugt werden. Eine Vergrößerung der Zählrate würde die Energieauflösung durch die Raumladungsverbreiterung beeinträchtigt.

Ein Programm zur Auswertung der Daten [ HEI 96 ] konvertiert diese „Signal – Zeit“ Verteilung in eine „Signal – Energie“ Abhängigkeit. In diesem Zusammenhang ist auf die zeitliche Auflösung der aufgenommenen Flugzeitspektren hinzuweisen, vgl. Kap. 3.1 : je geringer die Geschwindigkeit der Photoelektronen, desto mehr Zeitkanäle stehen für die Signalaufnahme zur Verfügung. Für das Energiespektrum ist demnach im Bereich niedriger Elektronenenergien ( 1 eV ) eine Energieauflösung von etwa 5 meV erreichbar, während für hohe kinetische Energien um 10 eV lediglich eine Auflösung von minimal 150 meV realisiert werden kann.

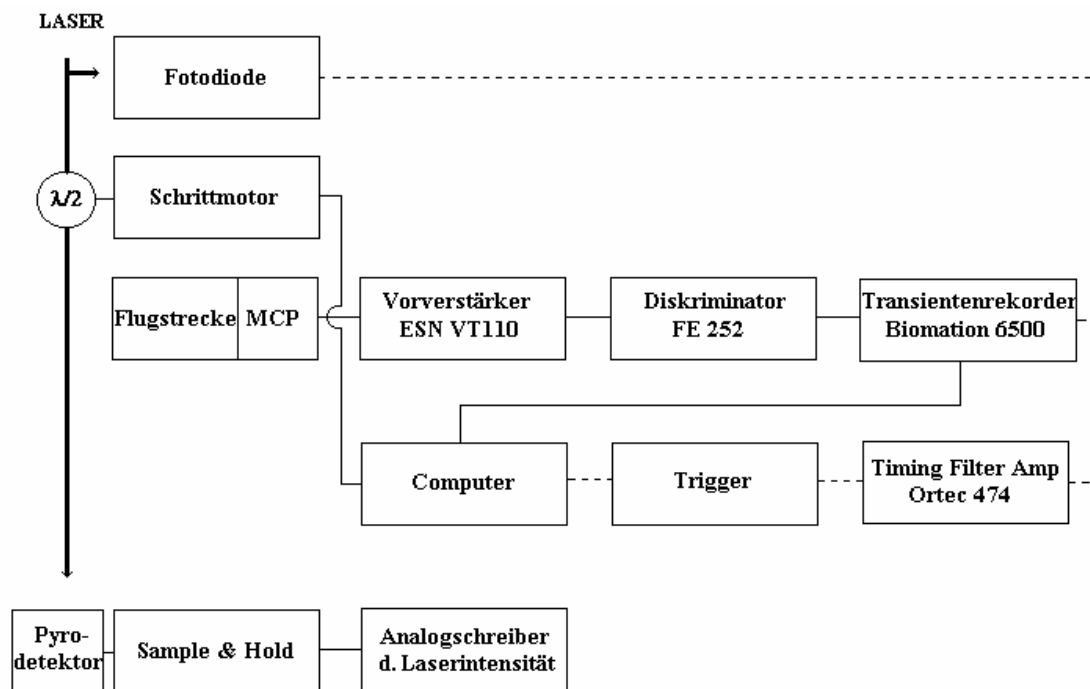


Bild 33.2 : Die Abbildung zeigt schematisch den Signalweg und die Komponenten der elektronischen Signalverarbeitung

Für die Aufnahme der Flugzeitspektren ist eine Eichung der Signalaufnahme von großer Bedeutung. Ich spreche zunächst den Startzeitpunkt der Messung an, der von einem Puls der Fotodiode, dem Triggersignal gesetzt wird. Dieser Trigger wird für die Eichung durch direkte Kontaktierung mit dem Anfang der Signalaufnahme verbunden. So kann die Laufzeit des

Signals durch den Signalweg bezüglich dieses Triggers ermittelt werden und gegebenenfalls durch die Positionsänderung der Fotodiode an den Startzeitpunkt und der Nullpunkt der Flugzeitmessung korrigiert werden. Eine nachträgliche Kompensation im Rechnerprogramm kann somit entfallen.

Eine weitere Möglichkeit der Eichung geschieht dann ausschließlich in der Signalaufbereitung des Computerprogramms. Hier geht es um Laufzeitveränderungen, die durch Effekte wie Kontaktpotentiale und Beschleunigungsfelder entstehen. Eine diese Effekte berücksichtigende Software ist im Auswerteprogramm implementiert.

Als weitere Option der elektronischen Signalaufnahme ist die rechnergesteuerte Bewegung einer  $\lambda/2$  – Platte zu nennen, die im Strahlengang des Lasers vor der Vakuumkammer steht. Ein Schrittmotor steuert über ein Getriebe die Drehung der Verzögerungsplatte und somit die Polarisationsrichtung des Lasers in Winkelschritten, die als Variable mit einer minimale Schrittweite von 4,5 Grad im Computerprogramm einzusetzen ist. Nach einer gewählten Schußzahl und der darauffolgenden Speicherung des Spektrums, setzt das Programm die Messung im zuvor programmierten Umfang für den nächsten Winkelwert fort. Mit Hilfe dieser Drehung des E-Vektors relativ zur Nachweisrichtung kann für linear polarisiertes Licht eine Winkelverteilung der Elektronen des Multiphotonenionisationsprozesses aufgenommen werden, vgl. Kap. 4.1 .

Die Konstruktion von Flugstrecke und Detektor ermöglichten es, die Polarität aller Spannungen zu wechseln. Damit können Ionen, die durch ein elektrisches Feld in der Wechselwirkungszone in Richtung des Detektor beschleunigt wurden, nachgewiesen werden. Für die zeitliche Anpassung an die Flugzeit wird die Kanalbreite des Transientenrecorders auf 200 ns vergrößert, um so ein komplettes Flugzeitspektrum bis zu einer Massenzahl von 180 aufzunehmen, vgl. Bild 31.3.

Da alle Prozesse dieses Experiments nichtlinear von der Strahlungsintensität abhängig sind, ist eine Leistungskontrolle unbedingt erforderlich. Hierzu wird die Laserstrahlung, die nach dem Multiphotonenionisationsprozeß die Vakuumkammer wieder verläßt, von einem Pyrodetektor aufgenommen, von einer Sample & Hold Elektronik integriert, verstärkt und von einem analogen Schreiber festgehalten. Bei einer Intensitätsveränderung von <10% wurden diese thermisch bedingten Schwankungen durch eine Justage des Lasersystems kompensiert.



## 4 Meßdaten und Diskussion

### 4.1 Winkelverteilung der Photoelektronen

Bei der Wechselwirkung zwischen einem elektromagnetischen Feld und einem Atom wird nicht nur Energie ausgetauscht, sondern auch ein Drehimpuls übertragen, wobei jedes Photon eine Drehimpulseinheit ( $\hbar$ ) - das intrinsische Drehmoment des Photons (Spin), trägt. Wird nun für einen elektronischen Übergang ein Photon absorbiert bzw. emittiert, so bedeutet das, daß ein Drehimpulsquant nach den Regeln der Addition von Drehimpulsen zwischen Feld und Elektron ausgetauscht wird. Bei der Multiphotonenionisation wird mehr als eine Drehimpulseinheit übertragen, d.h. ein zweites Photon wechselwirkt mit einem Elektron, das bereits seinen Drehimpulszustand durch die Absorption des ersten Photons geändert hat usw., wobei die Addition der Drehimpulse nach Auswahlregeln stattfindet. Ein wesentliches Kriterium für die Art der relevanten Auswahlregeln ist die Polarisation der Strahlung, die in den im folgenden diskutierten Experimenten entweder als linear oder zirkular identifiziert wird.

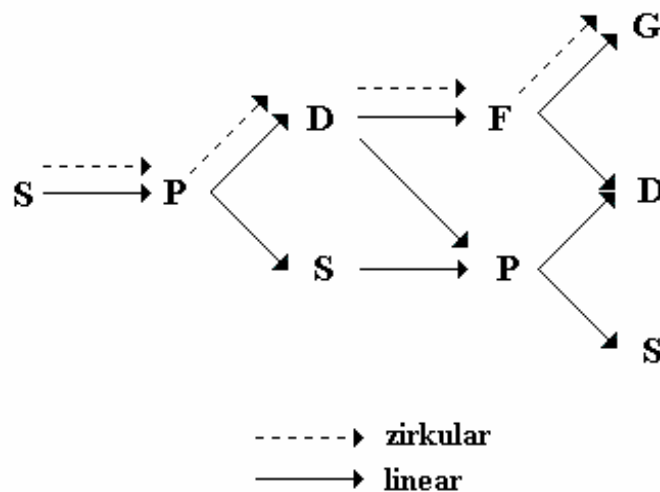


Bild 41.1: Kanäle für die Addition der Drehimpulse absorbierter Photonen einer Multiphotonenionisation beginnend vom S-Zustand für linear und zirkular polarisierte Laserstrahlung. [BRÄ 74]

Der Drehimpuls eines Photons mit zirkularer Polarisation ist sowohl Eigenzustand des totalen Drehimpulses  $S$  wie der Projektion  $S_k$  von  $S$  auf die Ausbreitungsrichtung  $k$  des

Photons – man spricht hier von definierter Helizität mit dem Wert  $+1$  oder  $-1$  abhängig von der Drehrichtung. Ein linear polarisiertes Photon hingegen ist zwar Eigenzustand von  $S$ , nicht aber von  $S_k$ . Dieser Unterschied hat zur Folge, daß bei einer Photonenabsorption unterschiedliche atomare Zustände erreicht werden, je nachdem ob linear oder zirkular polarisiertes Licht absorbiert wird, vgl. Bild 41.1. Eine Konsequenz der Reaktionen auf die Strahlungspolarisation ist die unterschiedliche Absorptionsrate, die direkt von der Polarisation abhängig ist ( bei einem unpolarisierten Initialzustand der Elektronen ). Qualitativ kann man diese polarisationsabhängigen Effekte verstehen, wenn man eine Anzahl sukzessiver Photonenabsorptionen bzw. die daraus resultierenden atomaren Zustände betrachtet und die Dipolauswahlregeln anwendet. Für linear polarisierte Strahlung in z-Richtung gelten die Auswahlregeln  $\Delta J = \pm 1, 0$  ( $0 \leftrightarrow 0$  nicht erlaubt) und  $\Delta M = 0$ , für zirkulare Polarisation ist  $\Delta M = \pm 1$ . Die Anzahl der möglichen Kanäle eines Multiphotonenüberganges ergibt sich nun direkt aus diesen Auswahlregeln, so daß im Fall linearer Polarisation deutlich mehr Möglichkeiten ( Kanäle ) für den Übergang offen stehen.

Geht man bei der Winkelverteilung der Photoelektronen von einer beliebigen Orientierung der Atome im Raum aus und weiter für den einfachsten Fall der Einphotonenionisation, so ist dieser Prozeß – unter Anwendung der Dipolnäherung – von der Polarisationsachse des elektromagnetischen Feldes und von der Richtung  $\hat{\mathbf{k}} = (\mathbf{k}/k)$  des Drehimpulsvektors  $\mathbf{k}$  des Photoelektrons abhängig. Für eine lineare Laserpolarisation wird die Richtung dieser Polari-

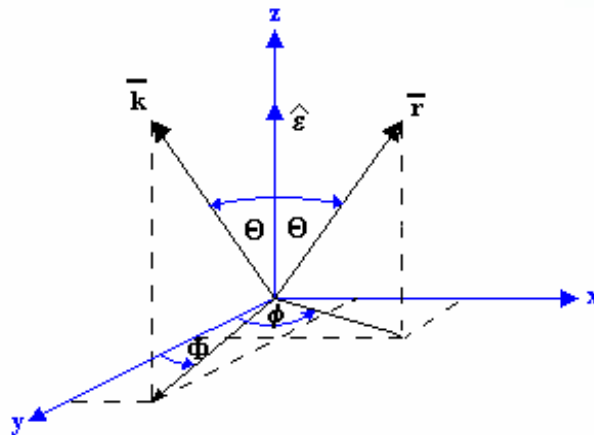


Bild 41.2 : Das sphärische Koordinatensystem zeigt den Wellenvektor  $\mathbf{k}$  des Photoelektrons und den Radiusvektor  $\mathbf{r}$  der Elektronenwellenfunktion. ( $\mathbf{k}$  ist nicht der Wellenvektor des Photons  $\kappa$ ) [SMI85]

sationsachse  $\hat{\mathbf{e}}$  als Referenzachse definiert, wobei hier die Ausrichtung des Drehimpulsvektors  $\hat{\mathbf{k}}$  in sphärischen Koordinaten  $\Theta$  und  $\Phi$  dargestellt werden kann, mit  $\cos \Theta = \hat{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{e}}$  vgl. Bild 41.2.

Die Winkelverteilung, bzw. die  $\Theta$ -Abhängigkeit des totalen Ionisationsquerschnitts, hat dann die Form [BET 57]:

$$I(\hat{k}) = I(\Theta, \Phi) = I(\Theta) = \frac{\mathbf{s}_{total}}{4\mathbf{p}} [1 + \mathbf{b}_2 P_{20}(\cos \Theta)] \quad (41-1)$$

$P$  : Legendrepolynom mit  $P_{20}(\cos \Theta) = [(3/2)\cos^2 \Theta - (1/2)]$ ,  $\mathbf{s}_{total}$  : totaler winkelintegrierter Ionisationsquerschnitt,  $\mathbf{b}$  : Anisotropieparameter.

Die Situation wird natürlich komplexer, wenn ein Multiphotonenprozeß vorliegt, bei dem von vielen Photonen Drehimpulse auf das Elektron übertragen werden. Für den Fall der Wechselwirkung mit vielen Photonen ist für *jede* Absorption, bedingt durch die Auswahlregeln, eine räumliche Anisotropie zu erwarten, da nicht alle  $m$ -Zustände besetzt werden. Daraus resultiert ein entsprechendes Verhalten der Photoelektronen, deren Winkelverteilung in diesem Fall einer Cosinus-Verteilung der Ordnung  $2N$  entspricht und für linear polarisierte Photonen eine allgemeinere Formulierung als 41-1 erfordert [SMI 85].

$$I(\Theta, \Phi) = I(\Theta) = \frac{\mathbf{s}_{total}}{4\mathbf{p}} \sum_{K=0}^N \mathbf{b}_{2K,0} P_{2K}(\cos \Theta) \quad (41-2)$$

$P_{2k}$  : Legendrepolynom  $2k$ -ter Ordnung,  $\mathbf{s}_{total}$  : totaler winkelintegrierter Ionisationsquerschnitt,  $\mathbf{b}_{2k,0}$  : Anisotropieparameter

Die Gleichung 41-2 kann als räumlich isotropes atomares System interpretiert werden, das einer einlaufenden, sphärischen elektromagnetischen Welle ausgesetzt ist. Da dieses Atom mit der Strahlung wechselwirkt und diese Wechselwirkung Dipoleigenschaften besitzt, also eine räumliche Cosinus-Verteilung hat, kann auch bei dem Gesamtsystem die Dipolanisotropie beobachtet und eine Winkelverteilung gemessen werden, deren theoretische Nachbildungen Legendrepolynome  $2N$ -ter Ordnung sind.

Für die Anpassungskurven [eine Summe von Legendrepolynomen gerader Ordnung] ergeben sich so die Legendrepolynome für  $l = 0, \dots, 5 \dots$  usw. in polaren Koordinaten :

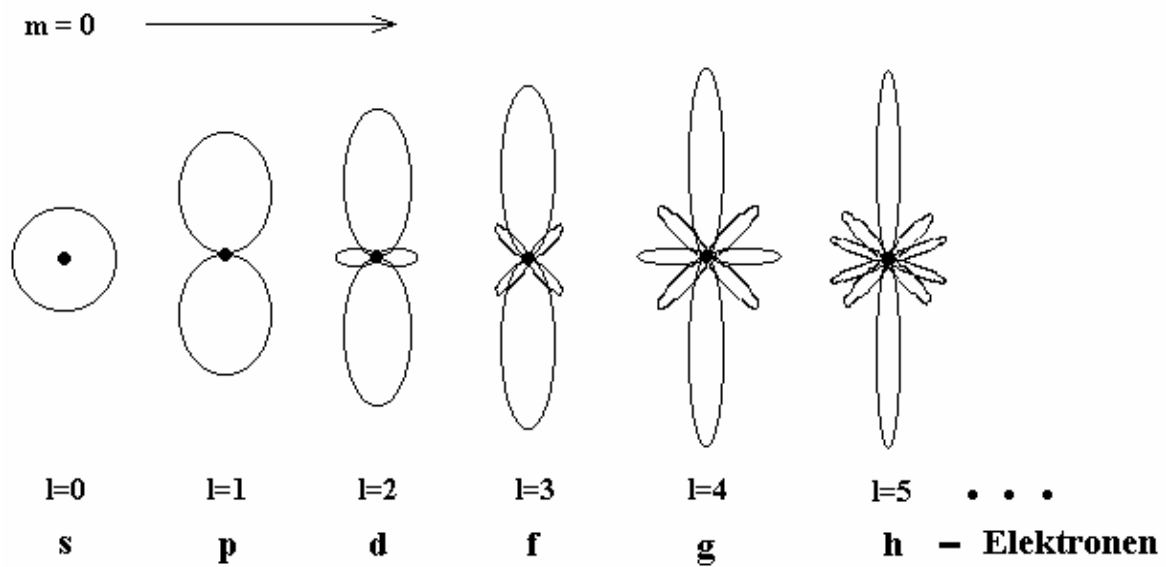


Bild 41.3 : zeigt die zu den Drehimpulssymbolen zugehörigen Drehimpulsquantenzahlen  $l$  und die entsprechende Elektronenverteilung in polaren Koordinaten.

### 4.1.1 Experimenteller Aufbau

Eine wichtige Komponente dieses experimentellen Aufbaus ist eine in einem Drehkranz angeordnete Verzögerungsplatte, die ein Schrittmotor über einen Zahnriemen steuert. Eine Winkelskala umgibt diesem Drehkranz. Um eine präzise Positionierung zu ermöglichen, ist ein Übersetzungsverhältnis zwischen dem antreibenden Zahnrad des Schrittmotors und der Aufnahme der  $\lambda/2$ -Platte, dem Drehkranz, von 1 : 3.33 gewählt worden. Unter Berücksichtigung des Schrittwinkels des Motors ist nun eine minimale Verstellung der Polarisierung der Laserstrahlung in Intervallen von 4,5 Grad möglich.

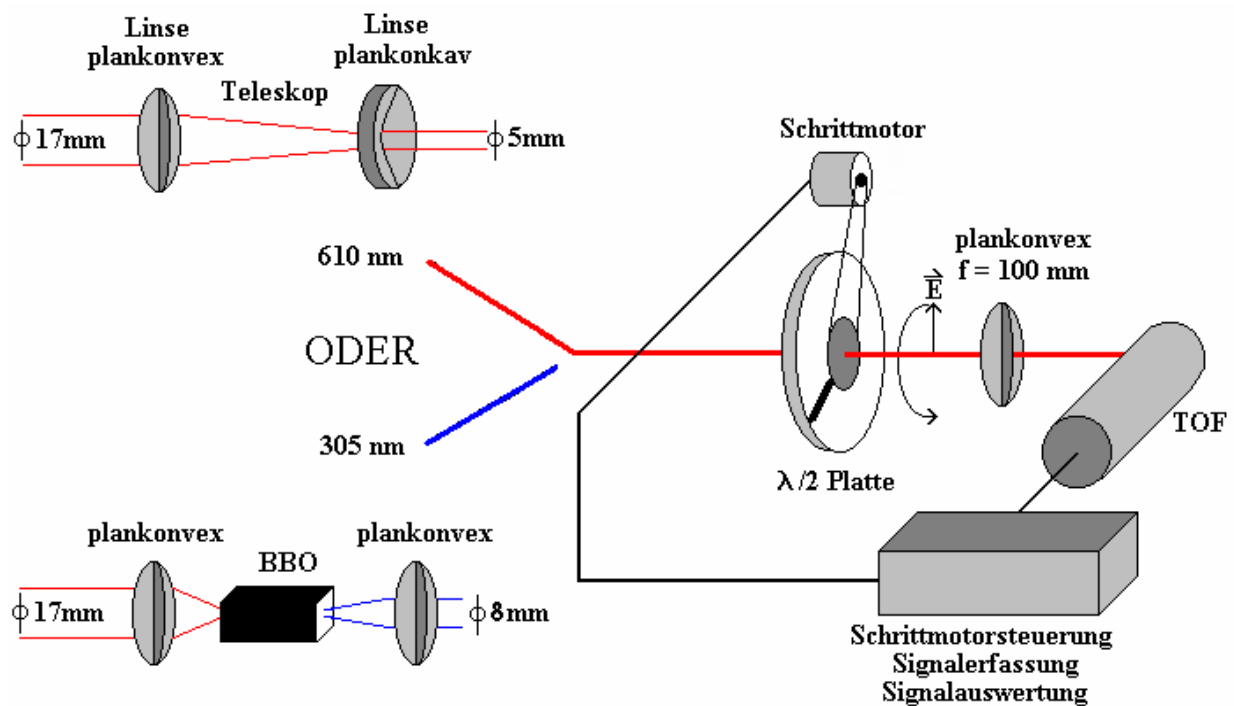


Bild 41.4 : zeigt den Aufbau zur Messung von Winkelabhängigkeiten der Multiphotonenionisation. Es kann mit einer Strahlung mit 610 nm und, frequenzverdoppelt, mit 305 nm gemessen werden. Die Winkelabhängigkeit wird durch eine computergesteuerte Veränderung der Polarisationssebene mithilfe einer Verzögerungsplatte realisiert, die per Schrittmotor definiert bewegt werden kann. Eine von der Position der Verzögerungsplatte abhängige Speicherung des Elektronenspektrums ermöglicht das mehrfache Durchlaufen einer Meßsequenz.

Diesen diskreten Einstellungsmöglichkeiten des E-Vektors steht aber das prinzipielle Winkelauflösungsvermögen des Elektronennachweises gegenüber :

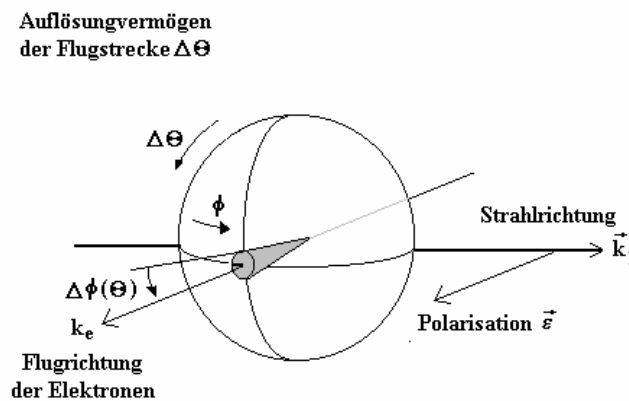


Bild 41.5 : zeigt den vektoriellen Zusammenhang der Laserstrahlrichtung, der Flugrichtung der Elektronen, der Polarisationsrichtung und des Auflösungsvermögens der Flugstrecke.

Für einen punktförmigen Laserfokus kann aus der Gesamtlänge der Flugstrecke und der Detektorfläche der Akzeptanzraumwinkel und damit auch die minimal mögliche Auflösung des Azimutwinkels, d.h. des Winkels zwischen Polarisationsrichtung des Lasers und der Richtung des Nachweises, bestimmt werden. Das folgende Bild 41.6 verdeutlicht die Beziehung (41.3):

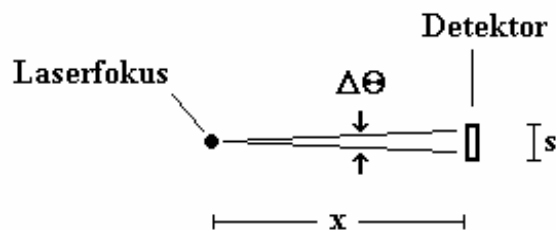


Bild 41.6 : Darstellung der prinzipiellen Auflösungsmöglichkeit der Detektionseinheit mit der Länge der Flugstrecke  $x$ , des Detektordurchmessers  $s$  und der möglichen Winkelauflösung des Azimutwinkels  $\Delta\Theta$ .

$$\tan \Delta\Theta_D \approx \Delta\Theta_D = \frac{s}{x} \approx 4,5^\circ \quad (41-3)$$

Für eine Flugstreckenlänge von 520 mm und einem Detektordurchmesser von 50 mm ergibt sich ein Akzeptanzwinkel von ca. 5 Grad. Natürlich ist diese Ungenauigkeit der Winkelauflösung für beide möglichen Winkel,  $\Theta$  und  $\phi$  relevant.

Einen weiteren Punkt, der zur Meßungenauigkeit beiträgt, betrifft die Geometrie des Laserfokus. Im Fokusbereich ist die Laserstrahlung nicht parallel, sondern verläuft in einem gausschen Profil unter einem Winkel zueinander, der durch die Brennweite der Linse und dem Strahldurchmesser bestimmt wird, vgl. [SCA 91]. Daraus folgt für einen Laserstrahl mit 8 mm Durchmesser, daß eine Ungenauigkeit von etwa 5 Grad berechnet werden kann, wobei mit abnehmendem Strahlradius die Auflösungsmöglichkeit zunimmt, vgl. [OTT 85].

Die bei diesem Experiment verwendeten Laserwellenlängen sind die im optischen, roten Wellenlängenbereich befindende 610 nm und die in einem BBO Kristall (Beta-Barium Borat) verdoppelte UV-Wellenlänge von 305 nm. Es ist hier zu bemerken, daß die den Verdopplerkristall verlassende UV-Strahlung eine durch die erforderliche Fokussierung in den Kristall verursachte starke Divergenz aufweist, die der Grund für einen etwas größeren Strahldurchmesser ist, siehe Bild 41.4. Eine Korrektur, um ein höheres Auflösungsvermögen zu erreichen, ist bei diesem Strahldurchmesser aus oben beschriebenen Gründen noch nicht erforderlich.

Um das Elektronensignal aufzunehmen, auszuwerten und die Meßpunkte durch ein Legendrepolynom anzufitten, wurden Rechnerprogramme von H. Stein [STE 84], G. Otto [OTT 85] und D. Petring [PET 85] für eine Anwendung auf einem PC umgeschrieben [HEI 95]. In Abhängigkeit von der Position des Schrittmotors und dem daraus resultierenden Emissionswinkel der Elektronen, werden den Elektronenspektren entsprechende Speicheradressen zugeordnet und Signale summiert. Durch die nun mögliche, beliebige Anzahl von Messungen und beliebige Abfolge von Winkelwerten innerhalb einer Meßserie, ist eine Minimierung von statistischen Fehlern zu erreichen. Im Hinblick auf die systembedingten Leistungsschwankungen des Lasers und auch der variierenden Intensitätsverteilung im Strahlprofil, ist diese Option eine wesentliche Voraussetzung für aussagefähige Meßergebnisse gewesen.

### **4.1.2 Photoelektronenenergiespektrum und Winkelverteilung von Xenon für Laserpulse mit 610 nm und 305 nm**

Prinzipiell existieren für jede Art dieser Messungen Unsicherheiten in den Meßdaten, die eine exakte Auswertung der Ergebnisse beeinträchtigen. Ich spreche hier Effekte an, die auf folgende, experimentell bedingte Umstände zurückzuführen sind :

- das zeitliche und räumliche Profil des Laserpulses
- durch Ionenrumpfe verursachte elektrische Felder im Fokusbereich
- Kontaktpotentiale in der Flugstrecke
- magnetische Restfelder
- der Akzeptanzwinkel des Detektors

Der zuerst angesprochene Punkt, eine Untersuchung dieses Einflusses wurde 1986 von Freeman et al. [FRE 86] durchgeführt, hat in diesem neuen Experiment durch die Verwendung eines ultrakurzen Laserpulses eine eingeschränkte Bedeutung. Freeman hat in seinen Experimenten sowohl die Laserintensität, die Intensitätsverteilung im Fokus, die Form des Fokus und auch die kinetische Energie der Photoelektronen als Parameter der Verteilung in den Messungen berücksichtigt. Durch die in unserem Experiment verwendeten sehr kurzen Pulse können nun ponderomotive Effekte bei der Diskussion der Meßwerte vernachlässigt werden (vgl. Kap. 2.4).

Raumladungen, die durch Ionenrumpfe im Fokusbereich erzeugt werden können, wurden durch Absenkung des Gasdrucks (und damit der Teilchendichte) vermindert. Die dadurch verursachte Reduktion der Anzahl der entstehenden Ionen führt zu einer Feldsituation im Fokus, die eine Beeinflussung der Photoelektronen durch die Ionenrumpfe vernachlässigbar macht.

Kontaktpotentiale sind durch elektrisch leitende Oberflächen in der Vakuumkammer weitestgehend vermieden worden. Die vorhandenen Isolatoren, z.B. die Kapillare der Wasserstoffversorgung, wurden mit einer Graphitbeschichtung bedeckt.

Für eine Überprüfung der vorgenommenen Maßnahmen, kann eine Eichung des Elektronenspektrums anhand von Elektronen mit bekannter Energie durchgeführt werden.

Die Winkelverteilung eines MPI-Prozesses mit linear polarisierter Laserstrahlung läßt, wie bereits beschrieben, Rückschlüsse auf den atomaren resonanten Ausgangszustand des



Multiphotonenprozesses zu. Da die Dipolauswahlregeln  $\Delta l = \pm 1$  und  $\Delta m_l = 0$  für jede Photonenabsorption fordern, kommt es zu der in Bild 41.7 dargestellten Kopplung von Anregungs- und Kontinuumszuständen, wobei im Experiment Übergänge mit  $\Delta l = +1$  viel häufiger zu beobachten sind als solche mit  $\Delta l = -1$  [FAN 85]. So kann beispielsweise ein beobachteter Zustand  $e_{l+1}$  in der S0 ATI-Gruppe als Resultat einer Photonenabsorption des atomaren Anregungszustand mit der Drehimpulsquantenzahl  $l$  ( oder  $l+2$  ) interpretiert werden.

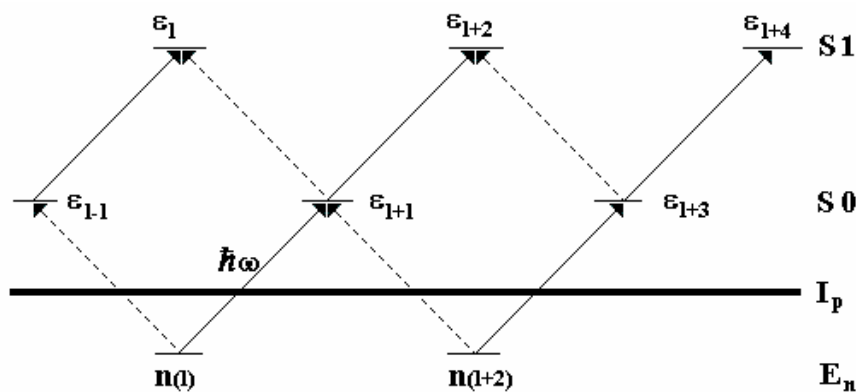


Bild 41.7 : zeigt die Verbindung von atomaren Anregungs- mit Kontinuumszuständen als Folge eines Dipolüberganges. Die Zustände sind hier mit den Drehimpulsquantenzahlen markiert.  $\Delta l = +1$  wird als volle Linie dargestellt [FEL 89]

Die angesprochenen angeregten Zustände des Xenonatoms sind in Bild 41.8 dargestellt und zeigen die durch den AC-Starkshift verursachte intensitätsabhängige, lineare Verschiebung dieser Niveaus. Die in diesem Experiment verwendete Photonenenergie von 2.035 eV ist als Pfeilfolge stellvertretend für den Multiphotonenprozeß bei den erwarteten Intensitäten eingetragen. Es ist bei dieser Darstellung vorausgesetzt worden, daß der AC-Starkshift neben der Ionisationsenergie auch für die Atomniveaus  $n > 3$  und  $l > 2$  eine lineare Verschiebung parallel zur Ionisationsgrenze verursacht, deren Absolutwert der Quiverenergie  $U_p$  eines freien Elektrons entspricht, vgl. Kap. 2.3 . Als Folge des dynamischen Starkshifts ist dann eine resonante Ionisation möglich, wenn ein ganzzahliges Vielfaches der Photonenenergie der Energiedifferenz des Grundzustandes zu einem verschobenen Niveau entspricht. In der Graphik 41.8 ist diese Situation beispielsweise für 610 nm bei einer Intensität von ca.  $1 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$  mit 7 Photonen gegeben, sodaß nun der verschobene 4 f Zustand ein resonanter Zwischenschritt ist, von dem, nach Absorption eines weiteren, des 8ten Photons, ein

Kontinuumszustand erreicht wird. Die Identifikation der verschobenen Zustände wird durch zwei Feinstrukturkomponenten  $^2p_{3/2}$  und  $^2p_{1/2}$  des  $Xe^+$  Ions kompliziert, denn die Elektronen haben bei einer Multiphotonenionisation die Möglichkeit, das Atom in einem dieser beiden Zustände mit dem energetischen Abstand von 1.31 eV zu verlassen.

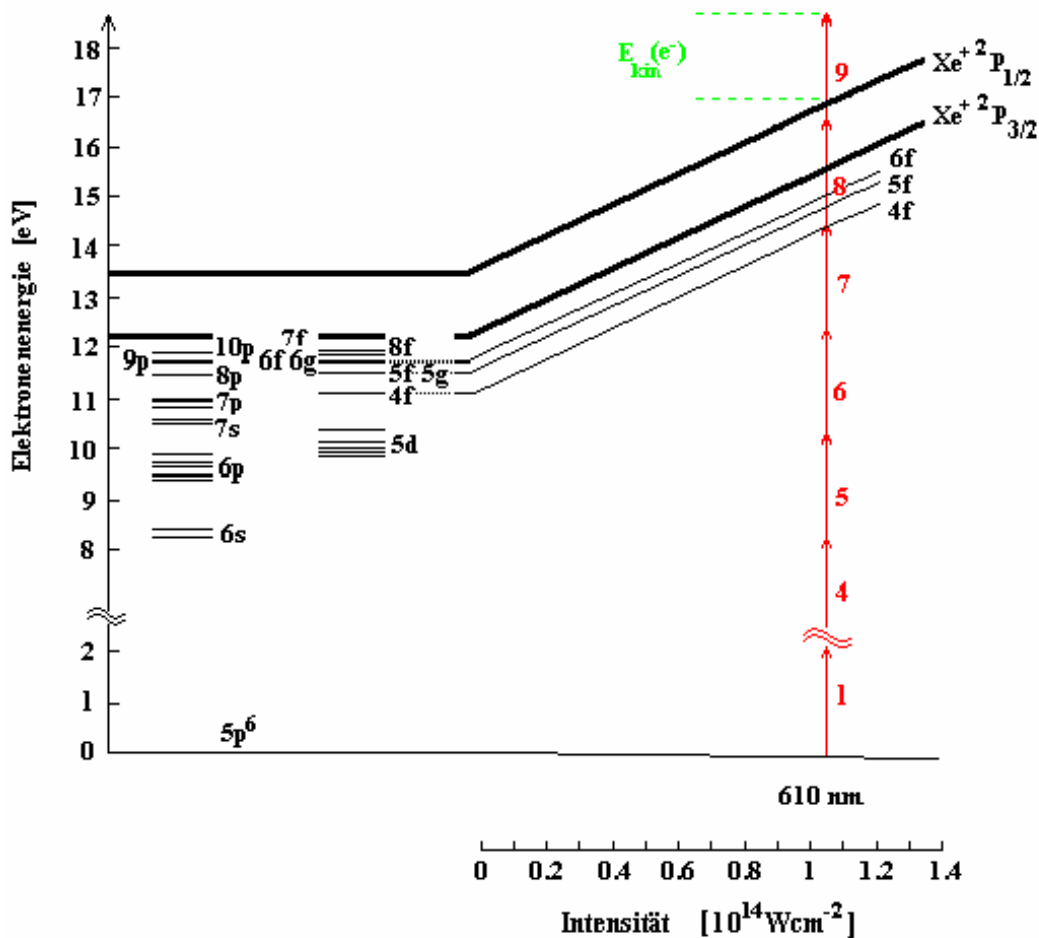


Bild 41.8 zeigt die Anregungszustände des Xenonatoms und den durch die intensive Strahlung verursachten AC-Starkshift, der eine lineare Verschiebung der Energiezustände und auch der Ionisationsgrenzen zur Folge hat. Die Anzahl der absorbierten Photonen ist neben den jeweiligen Pfeilmarkierungen vermerkt, welche einen typischen MPI-Prozess skizzieren. Gerechnet wurde diese AC-Starkverschiebung von M. Trahin, vgl. [FEL 89]

Ein für Xenon typisches Multiphotonenionisationsspektrum für linear polarisierte Strahlung mit der Wellenlänge von 610 nm und einer Intensität von ca.  $1 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  zeigt das Bild 41.9

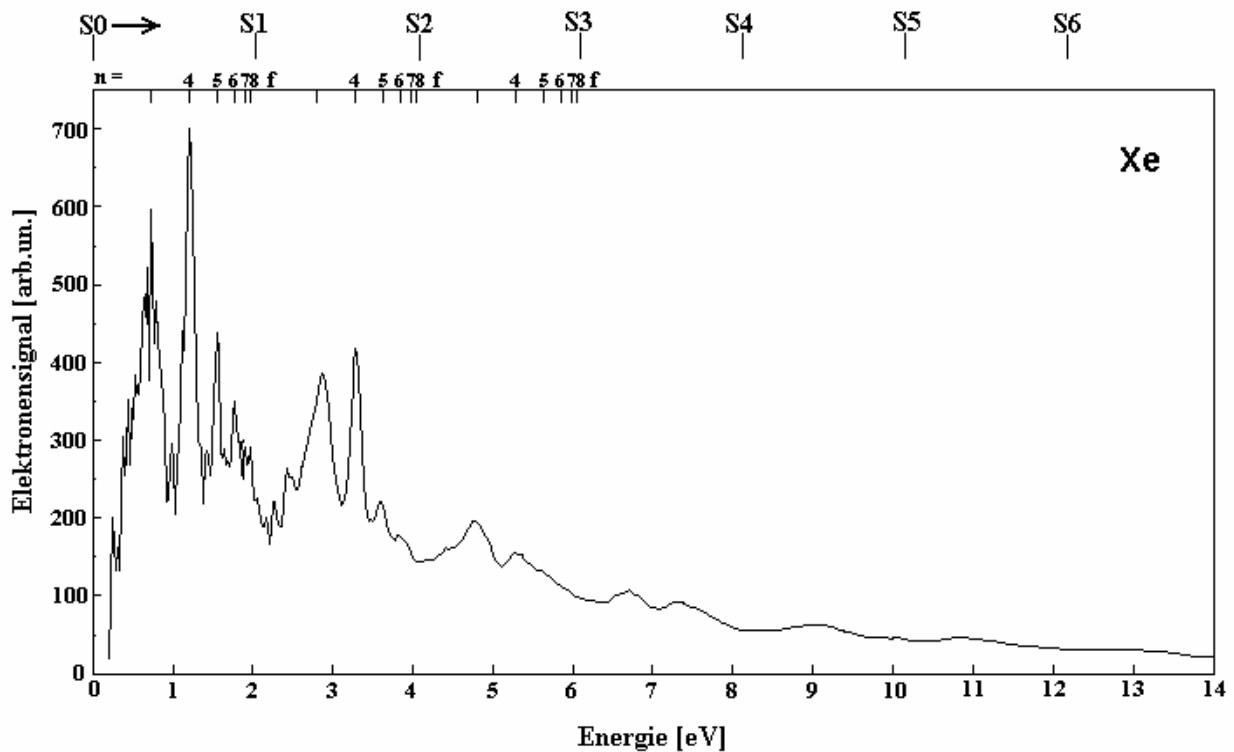


Bild 41.9 : Gemessenes Energiespektrum der Photoelektronen von Xenon für eine Wellenlänge von 610 nm, einer Pulsintensität von  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> und einer Pulsdauer von 400 fs. Die obere Skala zeigt die ATI – Serie, die Skala darunter die Hauptquantenzahlen resonanter Zwischenzustände.

das unter einem Polarisationswinkel von  $\Theta = 0^\circ$  der Laserstrahlung aufgenommen worden ist. Die obere Skala zeigt die einzelnen ATI-Gruppen - mit S bezeichnet - die jeweils um den Betrag der Photonenenergie von 2.035 eV separiert sind. Die darunterliegende Skala markiert die in der Substruktur auftretenden Elektronensignalmaxima und ordnet ihnen atomare Zustände zu, die im Multiphotonenionisationsprozeß als resonante Zwischenschritte genutzt werden. Für den Energiebereich bis 2.035 eV ist eine außerordentlich feine Strukturierung des Spektrums sichtbar, die mit wachsender Energie als Folge des abnehmenden Auflösungsvermögens der Flugstrecke an Detaillierung verliert. Die detektierten Elektronen haben im Fall ultrakurzer Laserpulse die Driftenergie (vgl. Kap. 2.4 ):

$$E'_S = (N'_0 + S)\hbar\omega - IP(I) - U_p(I) \quad (41-4)$$

$N'_0$ : Mindestanzahl der absorbierten Photonen, um die verschobene Ionisationsschwelle zu überwinden,  $IP(I)$ : Summe aus der „ungeshifteten“ Ionisationsgrenze  $IP_0$  und der Verschiebung des Grundzustandes zusammen,  $U_p(I)$ : die Quiverenergie des Photoelektrons beim Verlassen des Atoms bei der dazu verwendeten Laserintensität.

Das Spektrum hat im Bereich unterhalb 1eV, bei dem Energiewert 0,75 eV, ein hohes Elektronensignal, das mit dem resonanten Zwischenzustand 7p identifiziert werden könnte. Die Zuordnung der folgenden, höherenergetischen Signalmaxima kann bis zum Zustand mit der Hauptquantenzahl  $n = 8$  beobachtet werden, wobei die relative Signalstärke mit wachsender Hauptquantenzahl abnimmt – höherenergetische Zustände werden bei niedrigerer Feldintensität resonant.

Betrachtet man im folgenden die ATI – Gruppen  $\geq S1$ , so fällt zunächst der Abfall der Signalintensität als Folge der Abnahme der Absorptionswahrscheinlichkeit für zusätzliche Photonen auf.

Des weiteren kann festgestellt werden, daß das gesamte Spektrum von Signalmaxima dominiert wird, die den vom Grundzustand  $^2p_{3/2}$  des Xenonions ausgehenden Ionisationskanal präferieren, während Photoelektronen, die ihren Ausgangszustand im angeregten  $^2p_{1/2}$  Zustand des  $Xe^+$ -Ions haben, nur in Spektren für  $\lambda = 305$  nm nachgewiesen werden konnten.

Bild 41.10 zeigt gemessene Winkelverteilungen bei einer Wellenlänge von 610 nm, einer Intensität von  $\approx 1 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$  und einer Pulsdauer von etwa 400 fs. Die Verteilung des ersten, breiten Maximums im Elektronenspektrum bei ca. 0,75 eV ist untersucht worden und kann für die S0-ATI-Gruppe als d-Welle ( $l = 2$ ) interpretiert werden, vgl. Bild 41.11. Die zugehörigen Maxima in höheren ATI-Gruppen und deren Winkelverteilungen unterstützen diesen Schluß auf einen resonanten 7p Zwischenzustand.

Das im Xenonspektrum intensivste Photoelektronenmaximum ist über die resonant verstärkte Ionisation über den Zustand mit der Hauptquantenzahl  $n = 4$  erzeugt worden und ist mit dem 4f Zustand identifiziert worden, Bild 41.10. Deutlich ist eine g-Wellencharakteristik ( $l = 4$ ) des Signalmaximums in der S0-ATI – Gruppe zu sehen, d.h. ein Hauptmaxima bei  $\Theta = 0^\circ$  und zwei weitere, kleinere bei  $\Theta = 50^\circ$  und  $\Theta = 90^\circ$  mit entsprechenden Minima bei  $\Theta = 30^\circ$  und  $\Theta = 70^\circ$ . Mit zunehmender ATI-Ordnung wird mit jedem weiteren absorbierten Photon ein Drehmomentquant übertragen und eine entsprechende Winkelverteilung gemessen. Die Bildfolge (41.10) „4f S0“ bis „4f S3“ zeigt Meßdaten, die dieses Verhalten bestätigen können und eine entsprechenden g, h, i, k – Wellencharakteristik erkennen lassen.

Für den nächst höheren Zustand mit der Hauptquantenzahl  $n = 5$  wurde in der S0-ATI-Gruppe eine Verteilung mit Maxima bei  $\Theta = 0^\circ$ ,  $\Theta = 40^\circ$  und  $\Theta = 70^\circ$  entsprechend einem h-Wellencharakter ( $l = 5$ ) gemessen – d.h. daß ein g-Zustand mit  $n = 5$  der resonante Ausgangszustand sein muß. Der 5g Zustand ist der niedrigste Zustand mit dem Drehimpuls  $l = 4$  im Xe Atom. Eine vergleichbare Winkelverteilung wurde auch für den Zustand mit  $n = 6$  gemessen und führt zu der Annahme einer resonanten Ionisation über den 6g Zustand.

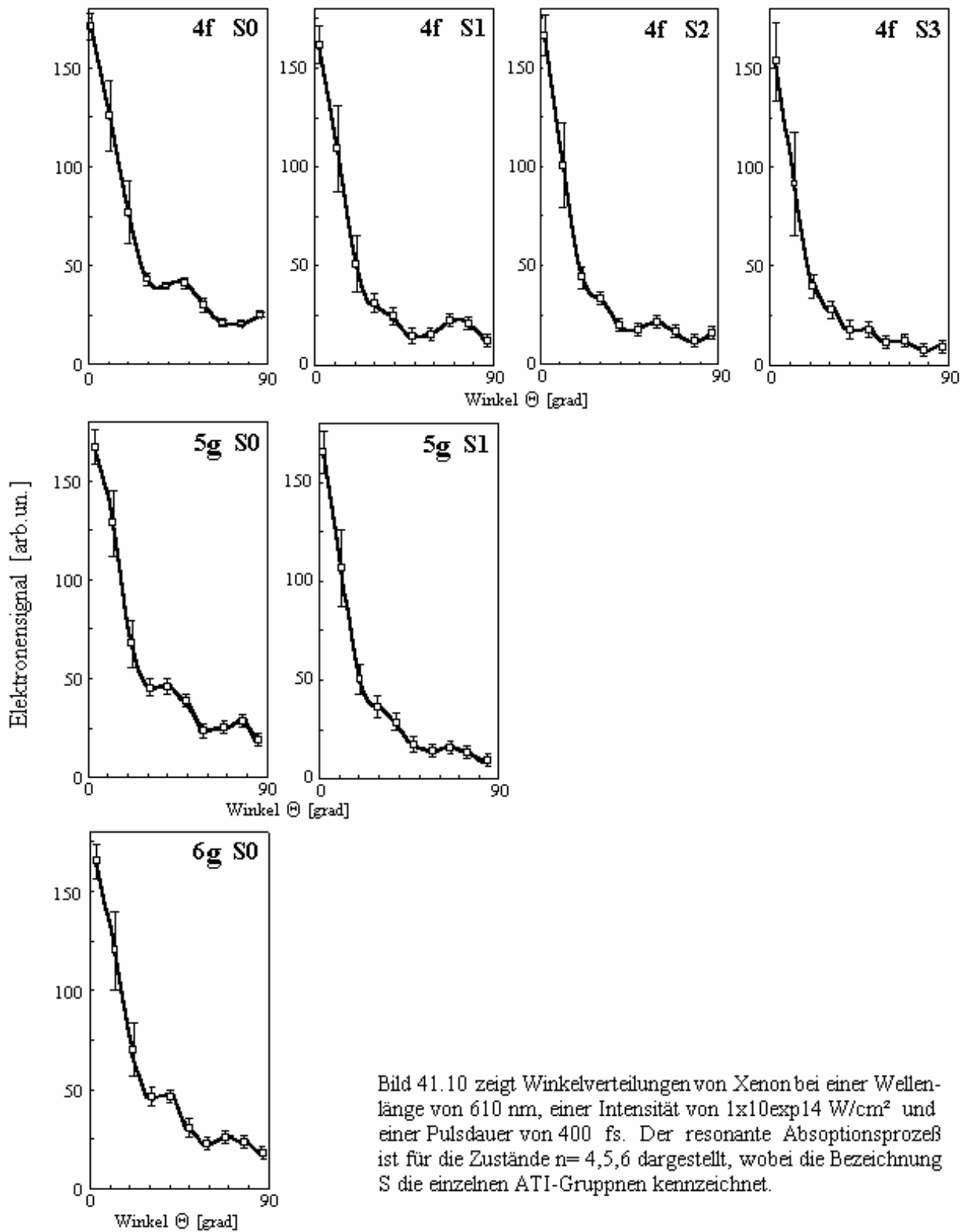
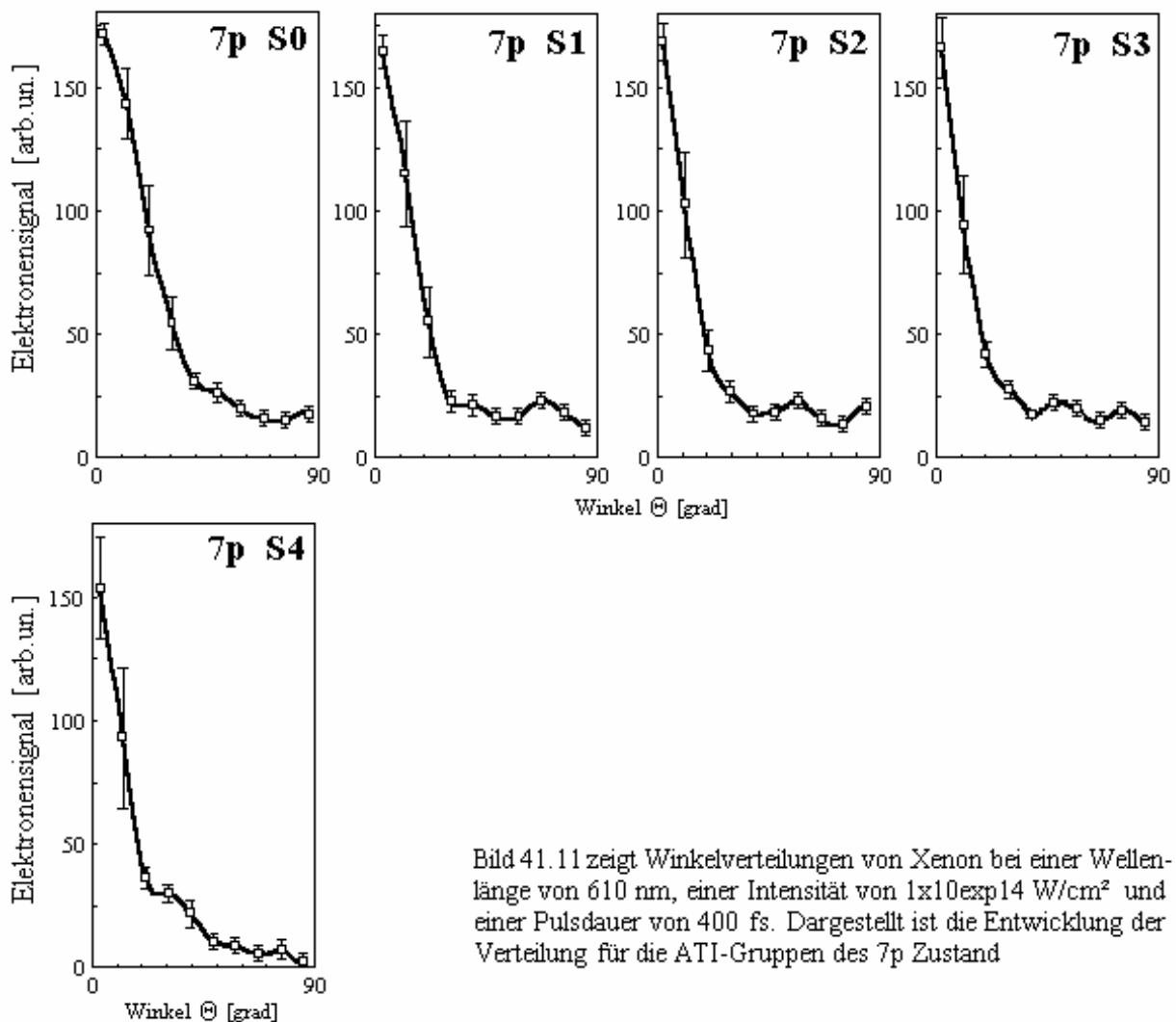


Bild 41.10 zeigt Winkelverteilungen von Xenon bei einer Wellenlänge von 610 nm, einer Intensität von  $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und einer Pulsdauer von 400 fs. Der resonante Absorptionsprozeß ist für die Zustände  $n=4,5,6$  dargestellt, wobei die Bezeichnung S die einzelnen ATI-Gruppen kennzeichnet.



Betrachtet man nun ATI-Gruppen mit  $S \geq 1$ , so stellt man zunächst für alle ausgewerteten Maxima eine stärkere Emission der Photoelektronen in Richtung  $\Theta = 0^\circ$  fest. Sowohl für die 7p als auch für die 4f Resonanz kann die Addition je eines Drehimpulsquants pro zusätzlich absorbierten Photons an den sich ändernden Winkelverteilungen beobachtet werden. Deutlich ist bei jeder folgenden ATI-Gruppe ein zusätzliches Minimum oder Maximum in der Winkelverteilung sichtbar, d.h. eine aufeinanderfolgende Reihe eines d- bis i- Wellencharakters für 7p bzw. ein g- bis j- Wellencharakter für die 4f Resonanz, während das Maximum bei  $\Theta = 0^\circ$  mit zunehmender kinetischen Elektronenenergie zu der bevorzugten Emissionsrichtung wird.

Resonanzen mit den Hauptquantenzahlen  $n = 5$  und  $n = 6$  haben auf grund einer reduzierten Ionisationswahrscheinlichkeit als Folge der geringen Laserintensität bei der diese Zustände resonant sind und einer geringen Übergangsstärke ein schwaches Photoelektronensignal. Da bereits in der S0-ATI-Gruppe eine komplexe Winkelverteilung mit  $l = 4$  detektiert wurde, ist eine detaillierte Bestimmung der Verteilung in ATI-Gruppen  $S > 0$  nur eingeschränkt möglich und eine Auswertung daher nicht mehr sinnvoll.

Eine weitere Messung wurde mit der in einem optisch nichtlinearen Kristall ( BBO ) frequenzverdoppelten Strahlung durchgeführt, deren Wellenlänge mit 305 nm im ultravioletten Bereich des Spektrums liegt. Die durch die Verdopplung reduzierte Intensität beträgt ca.  $0,3 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  und die Pulsdauer etwa 280 fs. Bild 41.12 zeigt ein für diese

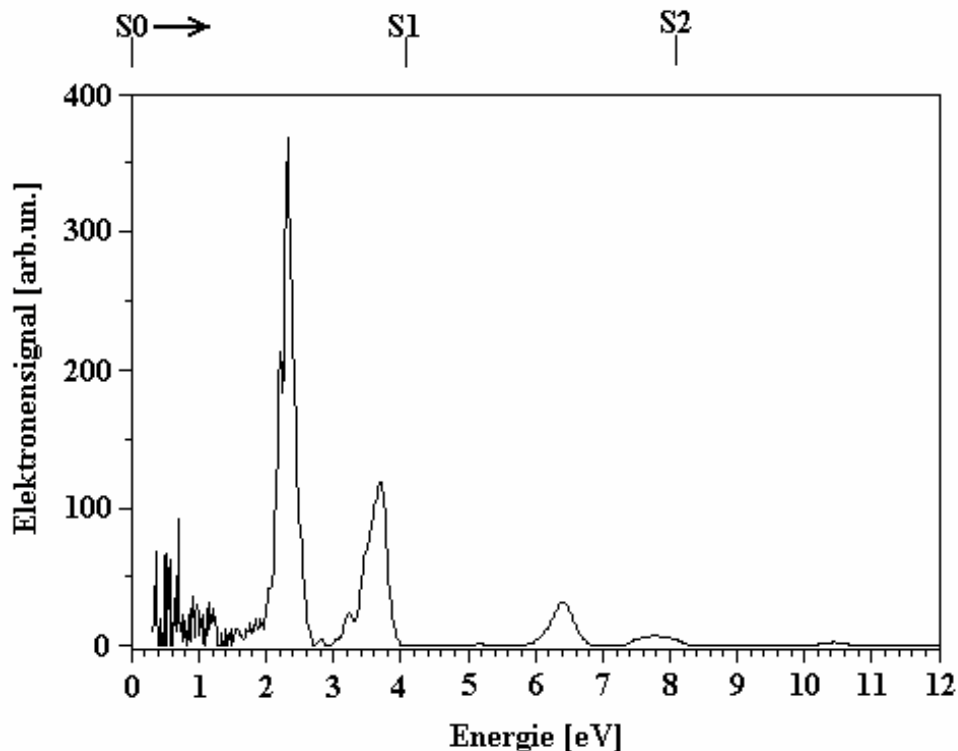


Bild 41.12 : zeigt ein typisches Spektrum der Photoelektronen von Xenon für einen MPI-Prozeß mit einer linear polarisierten Laserstrahlung bei 305 nm, der Intensität von ca.  $0,3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und einer Pulsdauer von 280 fs.

Wellenlänge typisches Spektrum mit im wesentlichen zwei Elektronenmaxima in der S0-ATI-Gruppe, die von den Feinstrukturkomponenten des Grundzustandes  $^2p_{1/2}$  und  $^2p_{3/2}$  des Xenonions ausgehenden Ionisationskanälen zugeordnet werden können und eine entsprechende Energiedifferenz von 1,31 eV ausweisen. Die Auswertung der kinetischen Energie der Photo-

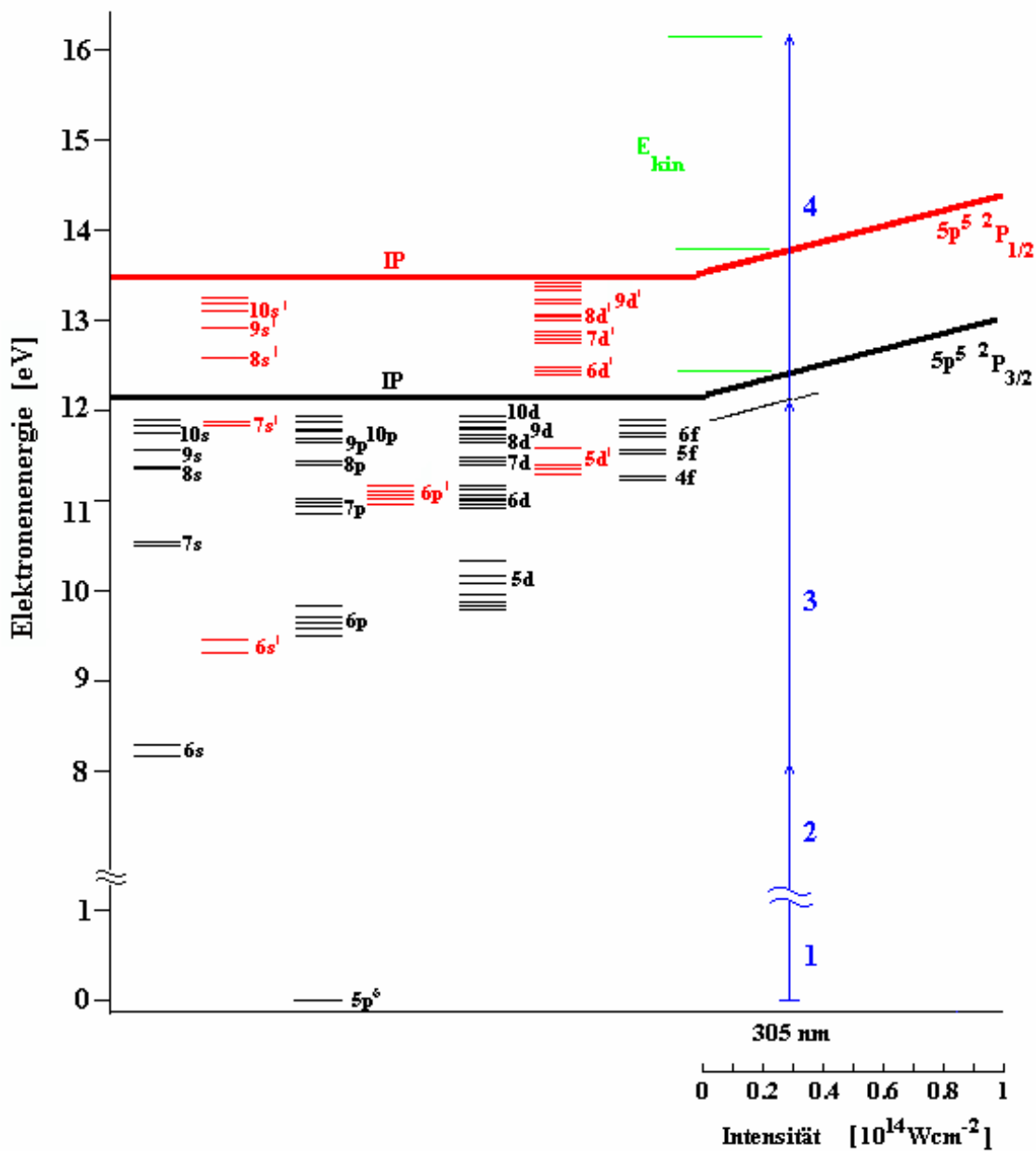


Bild 41.13 zeigt das Termschema des Xenonatoms und die Verschiebung der Zustände durch den AC-Starkshift in Abhängigkeit von der Intensität der Laserstrahlung. Die Starkverschiebung entspricht der Wellenlänge von 305 nm und einer Intensität von etwa  $0,3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Die beiden Feinstrukturkomponenten und deren Zustände sind farblich zugeordnet.



elektronen führt zu einer Identifikation der resonanten Zustände, die als Zwischenzustände in der Multiphotonenionisation der Energie von  $3\hbar\omega$  entsprechen, d.h. es werden Zustände relevant, die durch den AC-Starkshift auf die Energie von etwa 12,1 eV angehoben werden. Mit dieser Forderung ergibt sich aus dem die AC-Starkverschiebung für diese Wellenlänge berücksichtigenden Termschema des Xenon (siehe Bild 41.13) der Zustand mit der Hauptquantenzahl  $n' > 6$  für das erste Elektronenmaxima bei ca. 2,4 eV. Für das zweite Maxima mit der kinetischen Energie von ca. 3,7 eV kann der Zustand mit einer Hauptquantenzahl, die ebenfalls in dem Bereich  $n > 6$  liegt, den resonanten Zwischenschritt ermöglichen. Beide Maxima sind nach Absorption des fünften Photons auch in der S1-ATI-Gruppe bei einer Energie von etwa 6,4 eV bzw. 7,7 eV nachweisbar.

Das im Bild 41.13 dargestellte Termschema des Xenon zeigt neben den beiden Energieschemata für die Grundzustände  $^2p_{1/2}$  und  $^2p_{3/2}$  des Xenonions, die um 1,31 eV getrennt sind, auch die Entwicklung der AC-Starkverschiebung. Deutlich ist die Frequenzabhängigkeit des dynamischen Starkshifts zu erkennen, die für 305 nm dazu führt, daß die Steigung der Niveauverschiebung wesentlich geringer ist als im Fall der Strahlung mit 610 nm, d.h. für das Intensitätsintervall von 0 bis  $0,3 \times 10^{14} \text{Wcm}^{-2}$  ist der Energieshift etwa 0,25 eV. Damit stehen dem resonanten 3-Photonenschritt unter Berücksichtigung der Pulsanstiegsflanke nur wenige erreichbare atomare Zustände als resonanter Zwischenschritt zur Verfügung.

Für die gemessenen Elektronenmaxima, vgl. Bild 41.12, wurde eine Winkelverteilungsmessung mit den im Bild 41.14 dargestellten Ergebnissen durchgeführt. Die Winkelverteilung der Photoelektronen bei 2,4 eV zeigt einen f-Wellencharakter, sodaß hier auf den resonanten d-Zustand geschlossen werden kann. Die Auswertung des zugehörigen Maximums bei 6,4 eV in der S1-ATI-Gruppe ergibt aufgrund geringer Signalstärke keinen Hinweis auf die Absorption eines weiteren Drehimpulsquantums und des erwarteten g-Wellencharakters.

Die Winkelverteilung des zweiten Elektronenmaximums bei 3,7 eV kann ebenfalls als eine f-Wellencharakteristik gedeutet werden und somit hat der resonante Zwischenzustand den Drehimpuls  $l = 2$  und wird als d-Zustand identifiziert. Eine Auswertung der Daten für die zugehörige Verteilung in der S1-ATI-Gruppe führt zu dem Ergebnis, daß auch hier kein eindeutiger Hinweis für die Absorption eines zusätzlichen Photons, d.h. eine g-Wellencharakteristik, detektiert wurde.

Ein Vergleich mit den entsprechenden Messungen für 610 nm läßt erkennen, daß bei der reduzierten Intensität des 305 nm – Pulses und der geringeren Starkverschiebung als Folge der kürzeren Wellenlänge die Winkelverteilungen eine andere Charakteristik aufweisen. In der S0-ATI-Gruppe wird bei 610 nm mit einem 7-Photonenschritt ( $5p^6 \cdot ^1S_0 + 7\hbar\omega$ ) der  $6g$  Zustand resonant und nachgewiesen, während bei 305 nm eine 3-Photonenabsorption ( $5p^6 \cdot ^1S_0 + 3\hbar\omega$ ) genügt, um den Zustand mit einer Hauptquantenzahl  $> 6$  zu erreichen. Der Anregungs- und Ionisationsprozeß dieser 3- bzw. 4-Photonenabsorption hat trotz der geringeren Intensität von  $0,25 \times 10^{14} \text{Wcm}^{-2}$  eine hohe Übergangsrate.

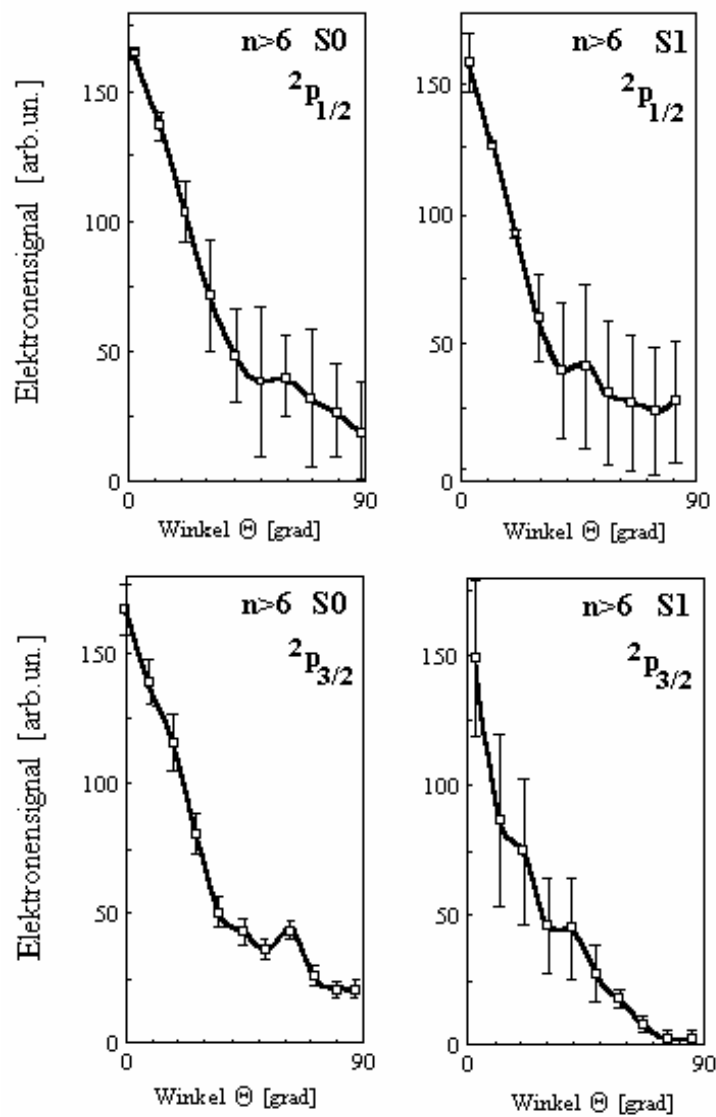


Bild 41.14 : zeigt die Winkelverteilung von Xenon bei einer Wellenlänge von 305 nm, einer Intensität von  $0,3 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> und einer Pulsdauer von 280 fs. S gibt die Zahl der zusätzlich im Kontinuum absorbierten Photonen an.

### 4.1.3 Photoelektronenenergiespektrum und Winkelverteilungen von Wasserstoff für Laserpulse mit 610 nm und 305 nm

Die Messung des Multiphotonenspektrums und der zugehörigen Winkelverteilungen für atomaren Wasserstoff wurde, wie für Xenon, mit dem beschriebenen Ultrakurzzeitlasersystem durchgeführt. Auch hier wird ein vom ponderomotiven Potential unbeeinflusstes Verhalten der Photoelektronen vorausgesetzt, sodaß ein Spektrum mit detaillierter Struktur als Folge einer resonanten Multiphotonenionisation erwartet werden kann.

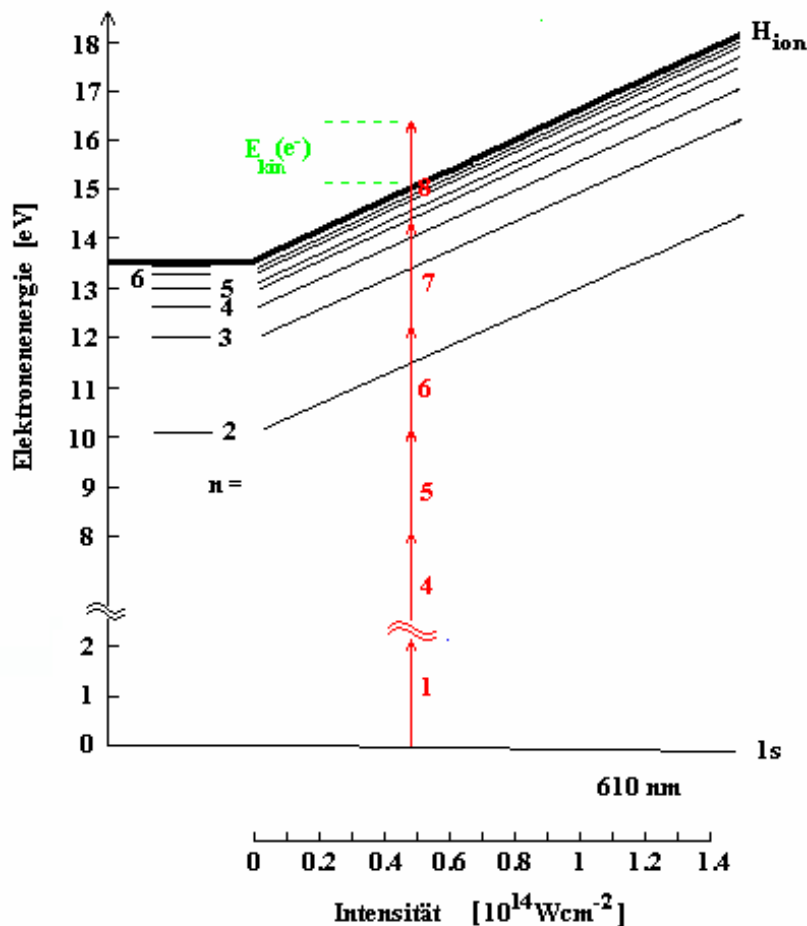


Bild 41.15 zeigt die intensitätsabhängige AC-Starkverschiebung der Ionisationsgrenze und einiger angeregter Zustände von atomarem Wasserstoff.

Die Abbildung 41.15 zeigt das Termschema von atomarem Wasserstoff mit einigen Anregungszuständen, die mit zunehmender Laserintensität – für nicht zu hohe Intensität – parallel zur Ionisationsgrenze durch den AC-Starkeffekt verschoben werden. Die Absorption im Multiphotonenionisationsprozess ist für 610 nm durch eine Pfeilfolge dargestellt, die sich aus Photonen mit einer Energie von je 2,035 eV zusammensetzt.

Ein typisches Multiphotonenionisationsspektrum für 610 nm mit ca.  $1 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$  und einer Pulsdauer von 400 fs dokumentiert das folgende Bild 41.16. Das Spektrum ist sehr fein

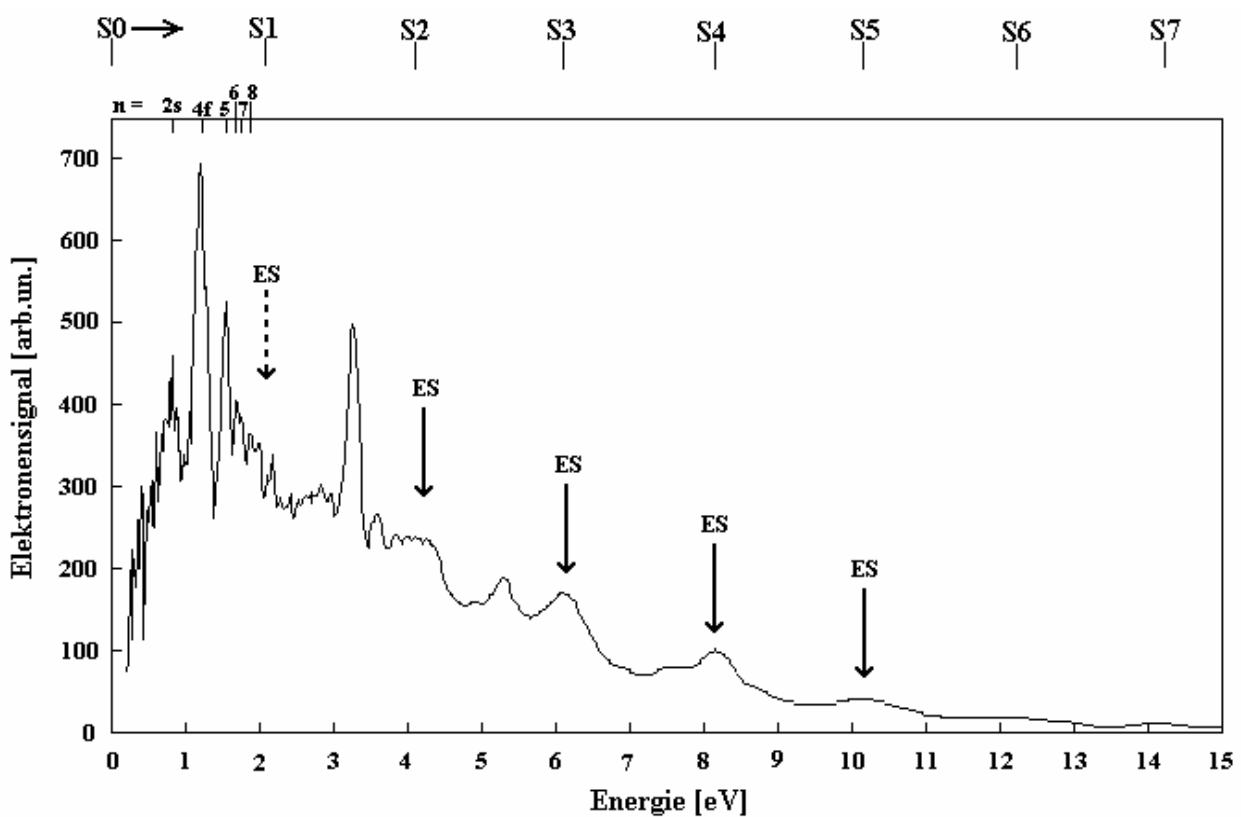


Bild 41.16 zeigt ein MPI-Spektrum des atomaren Wasserstoffs für 610 nm bei einer Intensität von  $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und einer Pulsdauer von 0,4 ps. Die obere Skala markiert die ATI-Gruppen, die Skala darunter resonante Zwischenzustände. „ES“ bezeichnet die sogenannte Extra Serie, vgl. [ WEL 93].

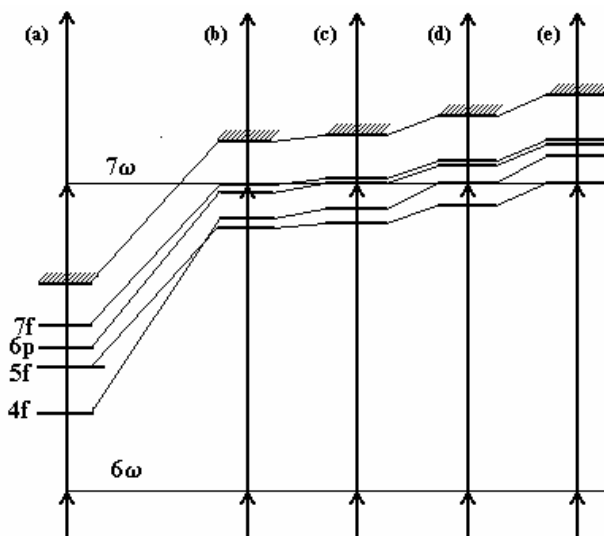
strukturiert und eine Separation in die verschiedenen ATI-Gruppen ist ebenfalls zu erkennen. Auch in diesem Spektrum ist in den energetisch höherliegenden ATI-Gruppen die reduzierte Auflösung des Flugzeitspektrometers die Erklärung für die hier fehlende Substruktur.

Für eine Interpretation der Signalmaxima ist es wie bei der Messung mit Xenon notwendig, von der Situation ultrakurzer Pulse auszugehen, also von einer in Gleichung 41-4 beschriebene Zusammensetzung der kinetischen Energie der Photoelektronen. Allerdings

erfordern die experimentellen Bedingungen eine weitere Erklärung bezüglich des intensitätsabhängigen AC-Starkshifts: da der reale Laserpuls eine ansteigende Flanke aufweist und damit einen Intensitätsbereich von Null bis zum Maximalwert durchläuft, hat folglich auch die zur Ionisation erforderliche Intensität zunehmende Beiträge  $\Delta IP(I(\bar{x}, t))$ , vgl. Gleichung 41-5. Da energetisch höherliegende atomare Energieniveaus durch den AC-Starkshift parallel zur Ionisationsgrenze verschoben werden, ist eine resonante Ionisation immer dann zu erwarten, wenn, in Abhängigkeit von Intensität und Starkshift, die Energiedifferenz zwischen Grundzustand und angeregtem Zustand ein ganzzahliges Vielfaches der Photonenenergie entspricht [FRE 87] [GON 89], vgl. Bild 41.17. In diesem speziellen Fall kommt es zu einer Ionisation nach einem resonanten Zwischenschritt mit 7-Photonen und auch, bei einer höheren Intensität, zu einer resonanten Anregung mit 8 Photonen in der S0-ATI-Gruppe, da die gesamte Starkverschiebung für das in diesem Experiment erreichbare Intensitätsintervall ca. 3,8 eV beträgt.

$$E'_s = (N'_0 + S)\hbar\omega - IP(I) - \Delta IP(I(\bar{x}, t)) \quad (41-5)$$

Für das Elektronenspektrum bedeutet dieses Verhalten, daß Zustände mit  $n = 4$  bis  $n = 8$  mit der Energie entsprechend einem 7-Photonenschritt in Resonanz „geschoben“ werden. Hierbei liegt das resonante Verhalten des 4f – Zustandes in einem höheren Intensitätsbereich der Strahlung als das des Zustand mit  $n = 7$ . Folglich ist durch die höhere Übergangswahrscheinlichkeit das detektierte Photoelektronensignal für die resonante Multiphotonenionisation über den 4f Zwischenzustand wesentlich größer und dominiert Prozesse, die bei geringerer Intensität ( über einen resonanten Zustand ) ionisieren [GON90], vgl. Bild 41.17.



Energy Levels in 7-Photon Induced Resonances

nl	$\alpha_{nl}$	$\beta_{nl}$	$I_R [W/cm^2]$
7f	$0.125 \times 10^{-14}$	$0.705 \times 10^{-17}$	$2.735 \times 10^{13}$
6p	$0.133 \times 10^{-14}$	$0.685 \times 10^{-16}$	$2.842 \times 10^{13}$
6f	$0.124 \times 10^{-14}$	$0.108 \times 10^{-16}$	$3.042 \times 10^{13}$
5p	$0.141 \times 10^{-14}$	$0.119 \times 10^{-15}$	$3.107 \times 10^{13}$
4p	$0.173 \times 10^{-14}$	$0.237 \times 10^{-15}$	$3.176 \times 10^{13}$
5f	$0.123 \times 10^{-14}$	$0.173 \times 10^{-16}$	$3.556 \times 10^{13}$
4f	$0.121 \times 10^{-14}$	$0.275 \times 10^{-16}$	$4.515 \times 10^{13}$

$\alpha_{nl}$ : Niveaushift  $\beta_{nl}$ : Zustandsbreite  
 $I_R$ : Intensität korrespondierend zum Zustand nl

Bild 41.17 zeigt die Rechnungen von Gontier und Trahin für die intensitätsabhängigen Starkverschiebung für atomaren Wasserstoff bei 608nm (a) - (e) zeigt die Entwicklung eines nichtresonanten 7-Photonen- in einen resonanten 8-Photonenprozeß [GON 90]

Eine Simulation von Gontier und Trahin [GON 90] für einen „realen“ Laserpuls, der einen Intensitätsbereich in der Ein- und Abschaltphase mit berücksichtigt, wird in Bild 41.18 mit gemessenen Winkelverteilungen verglichen.

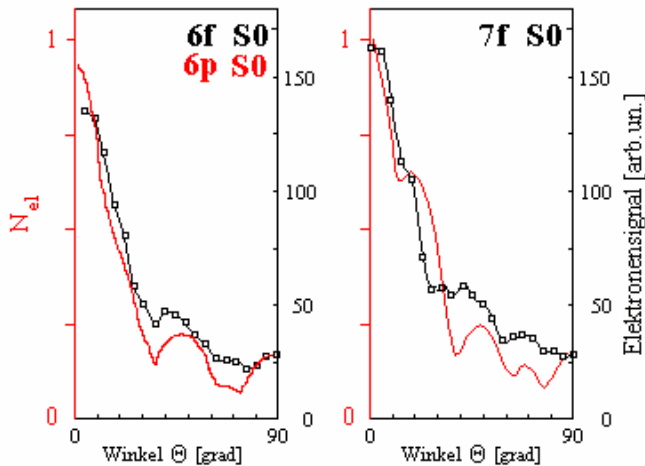


Bild 41.18 zeigt einen Vergleich der von Gontier und Trahin [GON 90] simulierten MPI-Winkelverteilung für atomaren Wasserstoff (rote Kurve) bei  $\lambda = 608 \text{ nm}$ ,  $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ,  $0,7 \text{ ps}$  mit zwei gemessenen Winkelverteilungen der Zustände 7f und 6f

$N_{e1}$ : totale Anzahl der Photoelektronen

Bei den theoretischen Kurven ( rot ) in Abb. 41.18 handelt es sich um eine Darstellung, die die Intensitätsänderung der Laserpulses und die sich dadurch ändernde Winkelverteilung der Photoelektronen als Folge der populierten Resonanzen zeigt ( vgl. Tabelle in Bild 41.17 „ $I_R$ “ ) [GON 90]. Es ist die totale Anzahl der Photoelektronen  $N_{e1}$  als Funktion des Emissionswinkels  $\Theta$  zu dem Zeitpunkt dargestellt, in dem der 6p bzw. 7f Zustand durch die Starkverschiebung ( bzw. Laserintensität ) mit einem 7-Photonenschritt in Resonanz ist. Ein Vergleich mit gemessenen Winkelverteilungen zeigt, daß das Modell die Messung gut nachbildet.

Das detektierte Elektronenmaximum bei etwa 0,85 eV wurde bisher theoretisch nicht genau bestimmt, da Auswirkungen des AC-Starkshifts auf resonante Zustände in sehr hohen Intensitätsbereichen nicht berechnet wurden und somit die Identifikation nur näherungsweise vorgenommen werden konnte. Das theoretische Photoelektronenspektrum von M. Crance [CRA 90] im Bild 24.2 ( Kap. 2.4 ) zeigt bei 0,9 eV ein deutliches Maximum und könnte mit dem resonanten Zustand mit  $n = 2$  identifiziert werden, vgl. [ FEL 90].

Die Messung der Winkelverteilung der Elektronenmaxima führt zu einer genaueren Zuordnung der resonanten Zustände, da die betrachteten Resonanzen direkt unter der Ionisationsschwelle liegen und der Ionisationsprozeß daher mit der Absorption nur eines

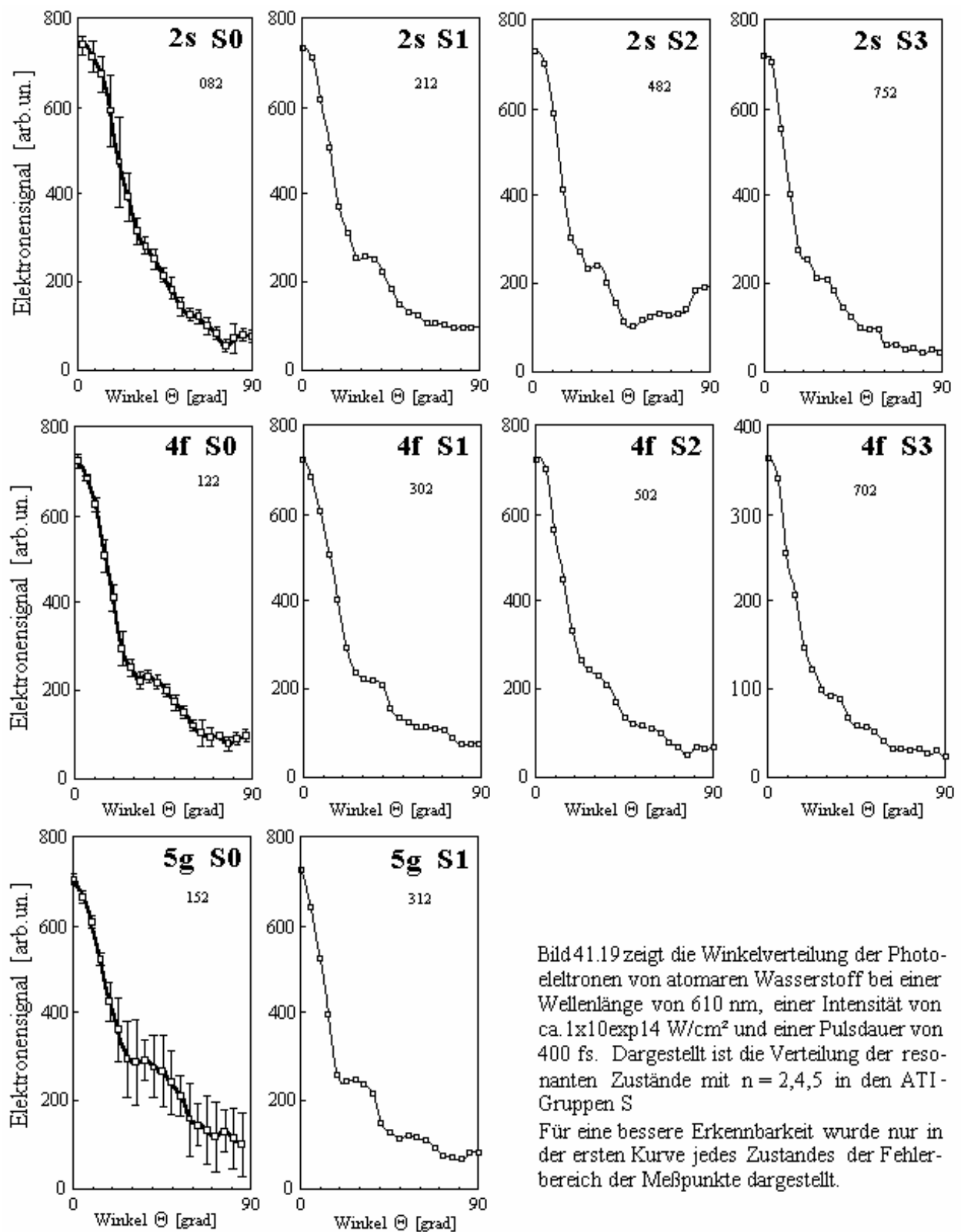


Bild 41.19 zeigt die Winkelverteilung der Photoelektronen von atomarem Wasserstoff bei einer Wellenlänge von 610 nm, einer Intensität von ca.  $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und einer Pulsdauer von 400 fs. Dargestellt ist die Verteilung der resonanten Zustände mit  $n = 2, 4, 5$  in den ATI-Gruppen S. Für eine bessere Erkennbarkeit wurde nur in der ersten Kurve jedes Zustandes der Fehlerbereich der Meßpunkte dargestellt.

weiteren Photons stattfindet. Es gelten die Dipolauswahlregeln mit  $\Delta l = \pm 1$  und  $\Delta m = 0$ . Die experimentellen Ergebnisse der Winkelverteilungsmessungen der dominierenden Elektronenmaxima des im Bild 41.16 abgebildeten Multiphotonenspektrums von atomarem Wasserstoff sind in der Graphik 41.19 und 41.20 dargestellt. Alle Verteilungen zeigen ausnahmslos ein Maximum für  $\Theta = 0^\circ$ . Auch für den mit  $n = 2$  angenommenen Zwischenzustand ist dieses Verhalten deutlich, wobei für die S0-ATI-Gruppe eine d-Wellecharakteristik vorliegt und somit auf eine „2s“ Resonanz geschlossen werden könnte. Eine 6-Photonenabsorption ( $1s + 6\hbar\omega$ ) erlaubt das Erreichen des verschobenen Niveaus mit  $n = 2$ , sodaß das Elektron nach der folgenden Zweiphotonenionisation das Atom mit der kinetischen Energie von etwa 0,85 eV verlassen kann. Eine weitere Erklärungsmöglichkeit ist das Erreichen der 3p Resonanz mit ( $1s + 7\hbar\omega$ ) Photonen, wobei eine nachfolgende Einphotonenionisation ebenfalls zur Detektion einer d-Wellencharakteristik führt. Für diese Überlegungen sollte aber beachtet werden, daß während einer Phase stetig steigender Laserintensität die Zustände mit  $n = 2$  und  $n = 3$  unterschiedliche Starkverschiebungen durchlaufen. Simulationen mit der Floquet-Theorie zeigen „Kreuzungspunkte“ dieser Zustände (vgl. Kap. 2.3), sodaß eine eindeutige Identifizierung des Zwischenniveaus nicht möglich ist. Die nachfolgenden ATI-Gruppen S1 bis S3 haben je zusätzlich absorbierten Photons bzw. Drehimpuls eine zunehmend kompliziertere Winkelverteilung, die in dieser Darstellung um je ein „halbes“ Maximum („Loop“) erweitert wird, vgl. Bild 41.19. Diese Partialwellen mit f, g, und h-Charakter werden jeweils durch die Wellencharakteristik der niedrigsten Photoionisation „nf“ in der S0 ATI-Gruppe dominiert.

Für die Ionisation über den resonanten Zwischenzustand mit der Hauptquantenzahl  $n = 4$  zeigt die Verteilung einen g-Wellencharakter mit den Maxima bei  $\Theta = 0^\circ$ ,  $\Theta = 45^\circ$  und  $\Theta = 90^\circ$ , d.h. es ist eine 7-Photonenresonanz ( $1s + 7\hbar\omega$ ) die mit der Absorption des 8ten Photons zur Ionisation in die S0 ATI-Gruppe führt. Bei den ATI-Gruppen  $S \geq 1$  kann die erwartete Änderung der Wellencharakteristik als Folge der weiteren Photonenaufnahme mit h, i und j nachgewiesen werden.

Ein sehr ähnliches Verhalten ist für Verteilungen zu beobachten, die über Zwischenzustände mit den Hauptquantenzahlen  $n = 6, 7$  und  $8$  ionisieren, siehe Bild 41.20. Auch hier ist in der S0 ATI-Gruppe neben den Maxima bei  $\Theta = 0^\circ$  und  $\Theta = 40^\circ$  ein für die Absorption einer geradzahigen Anzahl von Photonen typisches Maximum bei  $\Theta = 90^\circ$  in der S0 ATI-Gruppe zu sehen. Diese g-Wellencharakteristik wird für  $n = 8$  durch die nächst höhere ATI-Gruppe und die zu beobachtende h-Wellencharakteristik bestätigt.

Lediglich die Resonanz mit der Hauptquantenzahl  $n = 5$  entspricht nicht dem erwarteten Zustand 5f, Bild 41.19. Gemessen wurde für diese Ionisation eine Winkelverteilung, die entgegen den Rechnungen von Gontier und Trahin [GON 89] [GON 90] eine h-Wellencharakteristik zeigt und auf den resonanten Zustand 5g hindeutet. Dieser Zustand ist mit einer 8-Photonenresonanz und nur bei sehr hohen Intensitäten von etwa  $9 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$  erreichbar, wie Berechnungen von Ionisationsraten zeigen [SCA 91], wobei die Absorption des 9ten Photons dann zur Ionisation führt.

Als weiteres Ergebnis ist zu erwähnen, daß oberhalb der jeweiligen Resonanz und im Kontinuum die Übergänge mit  $\Delta l = +1$  in allen beobachteten Winkelverteilungen bevorzugt stattfinden. [FAN 85]



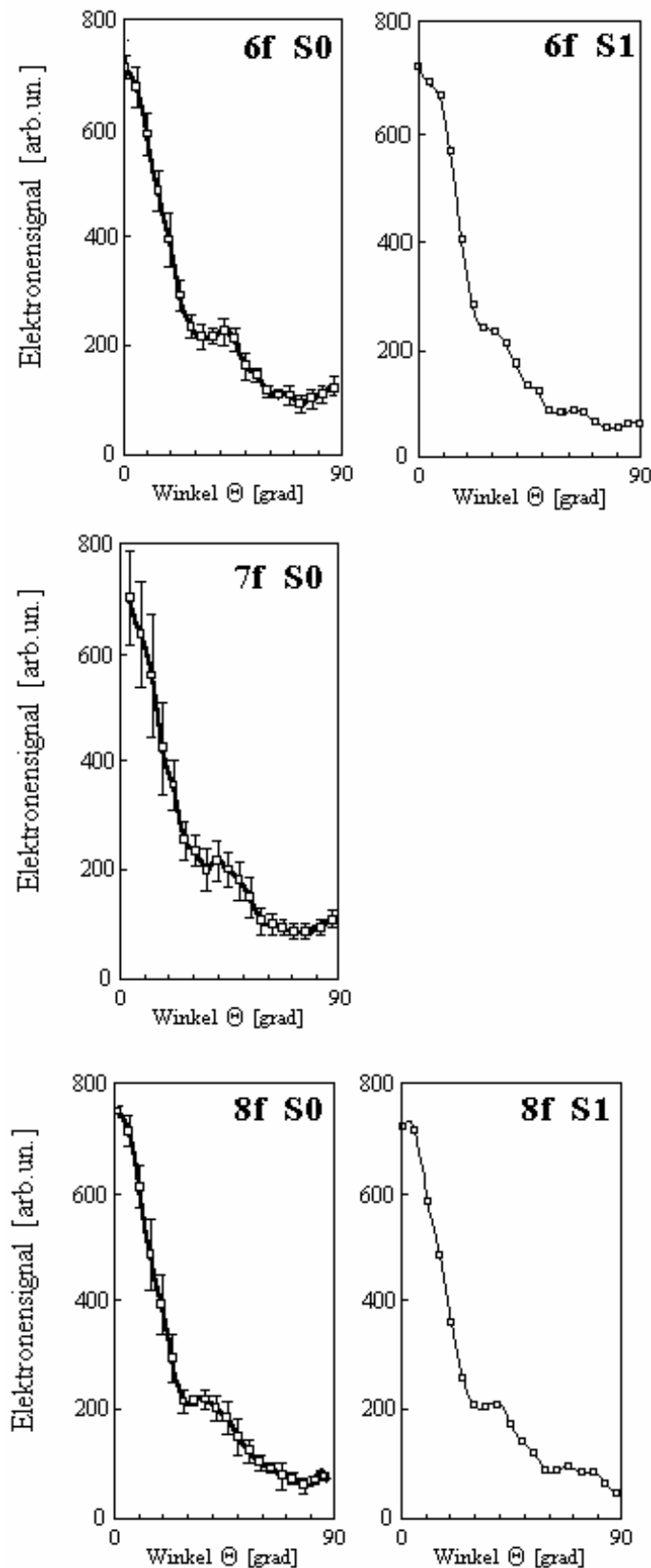


Bild 41.20 zeigt die Winkelverteilung der Photoelektronen von atomaren Wasserstoff bei einer Wellenlänge von 610 nm, einer Intensität von ca.  $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und einer Pulsdauer von 400 fs. Dargestellt ist die Verteilung der resonanten Zustände mit  $n = 6, 7$  und  $8$  in den ATI-Gruppen S. Für eine bessere Erkennbarkeit wurde nur in der ersten Kurve jedes Zustandes der Fehlerbereich der Meßpunkte dargestellt.

Die Elektronenmaxima, im Bild 41.16 mit „ES“ bezeichnet, markieren die schon in Kapitel 2.4 angesprochene „Extra Serie“ im MPI-Elektronen-Energiespektrum. In der S0 ATI-Gruppe, bei einer Elektronenenergie von  $E \approx \hbar\nu$  ist für dieses Maximum die zugehörige Winkelverteilung gemessen worden. Diese Verteilungen weisen ein Maximum bei  $\Theta = 0^\circ$  und mehrere schwächere bei  $\Theta = 35^\circ$ ,  $\Theta = 50^\circ$ ,  $\Theta = 70^\circ$  und  $\Theta = 80^\circ$  auf. Obwohl auch für die höheren ATI-Gruppen  $\geq S1$  noch ein ausreichendes Elektronensignal detektiert wurde, ist keine eindeutig erkennbare Struktur der Winkelverteilung zu beobachten. Es kann jedoch festgestellt werden, daß das Elektronensignal für  $\Theta = 0^\circ$  zunehmend mit der ATI-Ordnung dominiert und die weiteren Winkelanteile an Bedeutung verlieren.

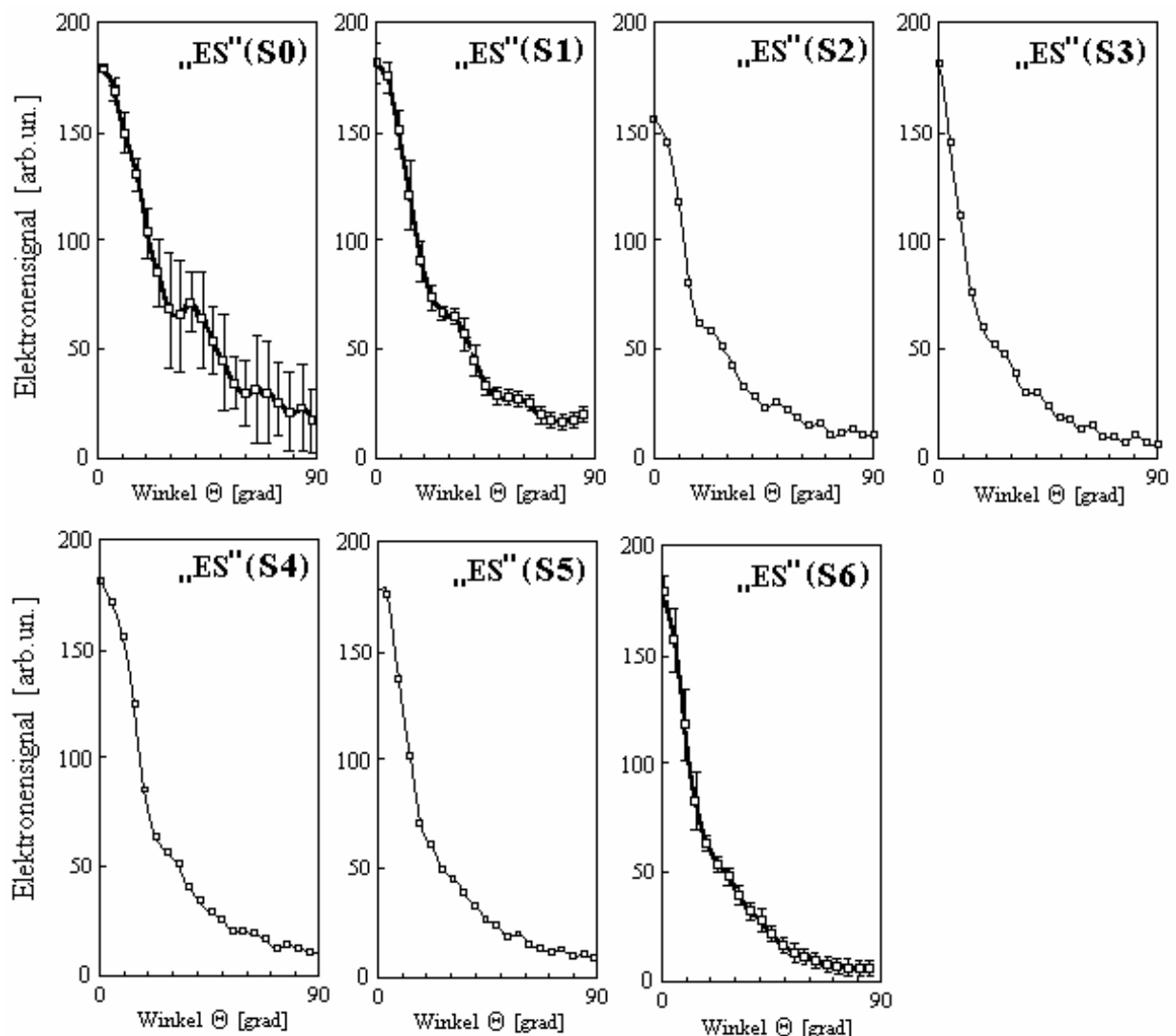


Bild 41.21: zeigt die Winkelverteilung der Elektronenmaxima der „Extra Peak“ Serie des atomaren Wasserstoffs. Mit der Wellenlänge von 610 nm, der Intensität von etwa  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> bei 400 fs Pulslänge sind diese Verteilungen für die ATI-Gruppen S0 bis S6 dargestellt. Für eine bessere Erkennbarkeit wurde nur in einigen Kurven der Fehlerbereich der Meßpunkte dargestellt.

Aufgrund der relativ komplizierten Winkelverteilung schon in der ersten ATI-Gruppe kann vermutet werden, daß hier eine Vielzahl von höheren Drehimpulswerten überlagert und damit etliche Rydbergzustände beteiligt sind. Insbesondere die Spektren der Winkelverteilung ab der dritten ATI-Gruppe lassen aufgrund des immer schlanker werdenden Elektronenmaximums bei  $\Theta = 0^\circ$  die Beteiligung vieler Rydbergzustände vermuten. Es ist denkbar, daß der Laserpuls als Folge seiner kurzen Dauer und daher hohen Bandbreite viele der nur gering separierten hohen Rydbergzustände an der Ionisationsgrenze simultan anregen kann. Die gemeinsame, wohl definierte Anregung bestimmter Zustände könnte dann zu einer kohärenten Überlagerung und damit zu der Ausbildung eines stabilen, radial lokalisierten Wellenpakets führen :

$$y(x,t) = \sum_{n,l,m} a_{n,l,m} |f_{n,l,m}\rangle \quad (41-6)$$

$f_{n,l,m}$  : Wellenfunktionen der atomaren Einzelzustände,  $a_{n,l,m}$  : eine zustandsabhängige Gewichtsfunktion

Diese Idee, die bereits von D. Feldmann et al. in einem Artikel [FEL92] beschrieben wurde, war Inspiration für die Rechnung von H.J. Stiemke [STI 95], Mitarbeiter der Forschungsgruppe von F.H.M. Faisal, der eine gewichtete Überlagerung mehrerer Einzelspektren durchgeführt hat. Die in Bild 41.22 abgebildete Simulation ist eine additive, gleichgewichtete Überlagerung dreier Einzelrechnungen zu Pulsintensitäten von 4.5, 5.9 und  $7.7 \times 10^{13} \text{Wcm}^{-2}$  für eine Photonenenergie von 2.04 eV mit den darüber abgebildeten Winkelverteilungen. Diesem Gesamtspektrum ist ein gemessenes MPI-Spektrum ( blaues Spektrum ) gegenübergestellt und es kann im direkten Vergleich festgestellt werden, daß die Meßsituation durch die numerische Simulation tendentiell nachgebildet werden konnte. Die gute Übereinstimmung der gemessenen Energien der „Extra Peaks“ mit den gerechneten Positionen mit den ermittelten Winkelverteilungen stärken die Vermutung, daß diese zweite Reihe (Extra-Peak-Reihe) tatsächlich aus einer Überlagerung von Rydbergzuständen resultieren könnte.

Um mit Hilfe der Ausbildung dieses Wellenpakets eine verstärkte Ionisation erreichen zu können, muß die Wiederkehrzeit dieses Pakets innerhalb der Dauer des Laserpulses stattfinden. Da die Dynamik des Wellenpakets mit der eines klassischen Elektrons auf einem Kepler-Orbit vergleichbar ist, gilt für die Periodendauer

$$t_{Kepler} = 2p\bar{n}^3 \quad (41-7)$$

$\bar{n}$  : effektive Hauptquantenzahl

sodaß sich für die experimentellen Bedingungen des Rydbergpakets mit effektiver Hauptquantenzahl  $\bar{n} = 15$  eine Wiederkehrzeit von  $t_{Kepler} \approx 0.5 \text{ps}$  ergeben würde.

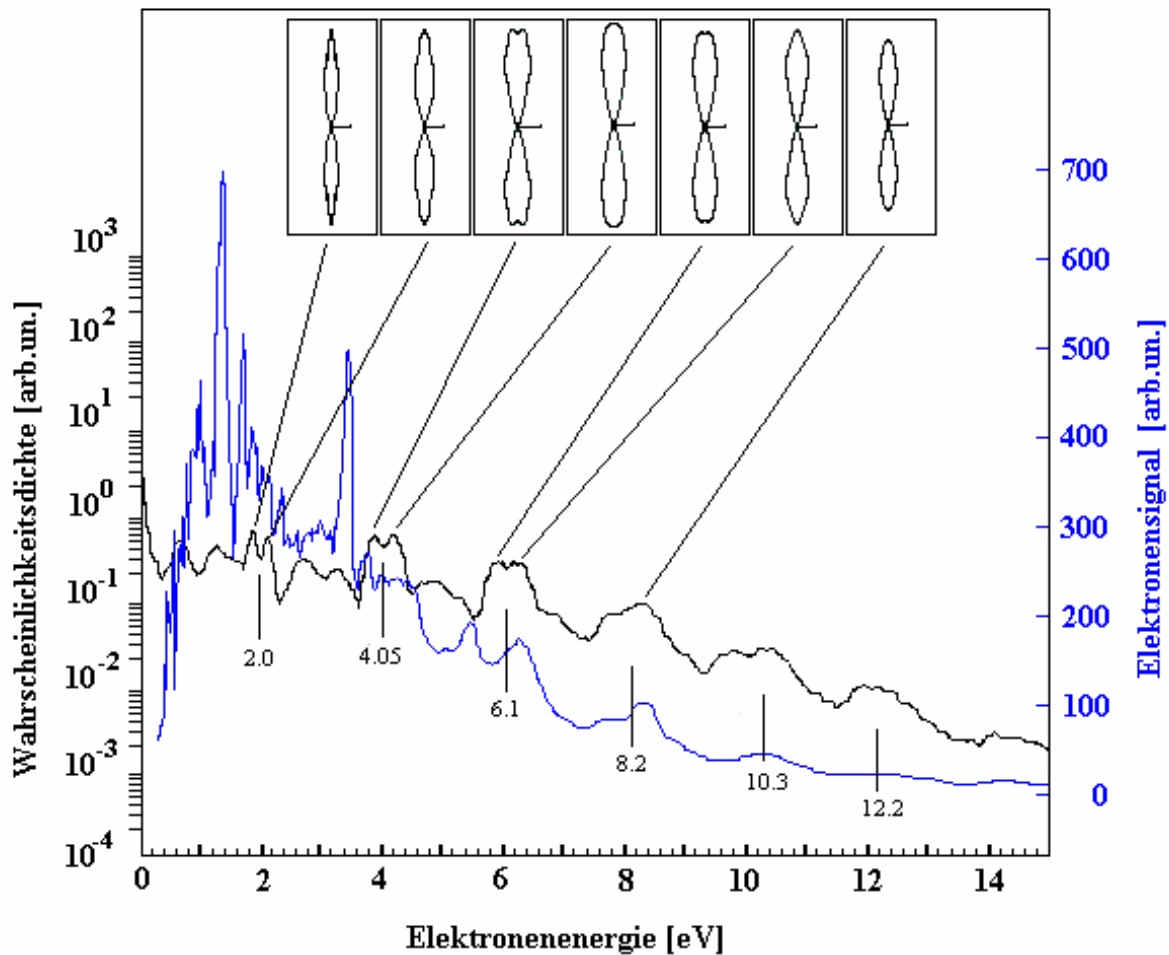


Bild 41.22 : zeigt das Energiespektrum von atomarem Wasserstoff als additive Überlagerung von drei Einzelspektren (schwarze Kurve) für Intensitäten von  $4.5$ ,  $5.9$ , und  $7.7 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. Die gekennzeichneten Maxima sind im wesentlichen auf das Spektrum mit  $7.7 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> zurückzuführen. Für diese Bereiche sind die entsprechenden Winkelverteilungen abgebildet [STI 95] . Die blau gezeichnete Kurve ist das gemessene Photoelektronenspektrum.

Eine weitere Messung einer Winkelverteilung für atomaren Wasserstoff wurde mit dem frequenzverdoppelten Laserpuls bei einer Wellenlänge von 305 nm im ultravioletten Spektralbereich durchgeführt. Die in einem BBO-Kristall verdoppelte Strahlung, vgl. Bild 41.4, hat nun eine Pulslänge von etwa 280 fs bei einer Intensität von ca.  $0,3 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Das für diese Situation relevante Termschema mit der mittels Störungstheorie berechneten AC-Starkverschiebung zeigt das folgende Bild 41.23. Da die Verschiebung der atomaren Niveaus

wie auch der Ionisationsschwelle auch von der Wellenlänge der Strahlung abhängig ist, muß die erwartete lineare Verschiebung geringer sein als im Fall der Strahlung mit 610 nm. Bei einer Intensität von etwa  $0,3 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$  kann mit einem 3-Photonenprozeß der  $n = 3$  Zustand des atomaren Wasserstoffs erreicht werden - im folgenden Bild 41.23 mit einer blauen Pfeilfolge skizziert.

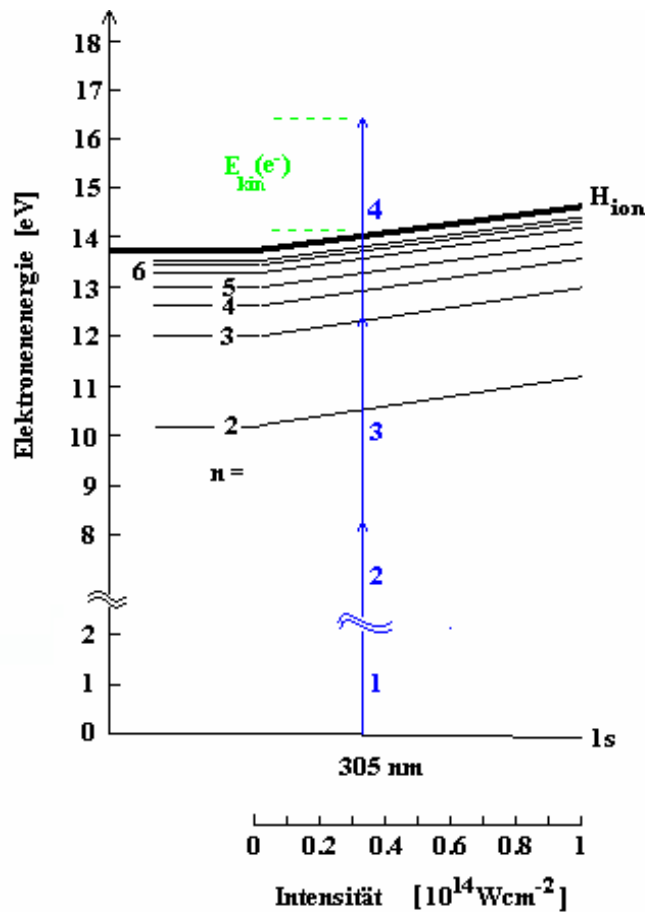


Bild 41.23 : zeigt die lineare AC-Starkverschiebung der Anregungszustände und der Ionisationsgrenze des Wasserstoffatoms für 305 nm. Die Absorption der Photonen mit einer Energie von 4,07 eV ist als blaue Pfeilfolge skizziert.  $E_{kin}$  bezeichnet die kinetische Energie der Elektronen nach der Ionisation.

Ein typisches Multiphotonenionisationsspektrum für atomaren Wasserstoff mit linear polarisierter Strahlung mit  $\lambda = 305 \text{ nm}$  bei einer Intensität von ca.  $0,3 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$  im Fokusbereich zeigt das unter einem Polarisationswinkel von  $\Theta = 0^\circ$  aufgenommenen Spektrum

Bild 41.24. Die obere Skala bezeichnet die ATI-Gruppe, die darunter angeordnete die möglichen resonanten Zwischenzustände des Ionisationsprozesses.

Das dominante Signalmaximum kann als resonante 3-Photonenabsorption identifiziert werden, die bei etwa 12,2 eV den verschobenen 3p Zustand des Wasserstoffatoms erreicht. Mit der Absorption des 4-ten Photons kommt es zu einer Ionisation wobei das Elektron das Atompotential mit einer kinetischen Energie von ca. 2,3 eV verläßt. Das zugehörige Signal in der S1-ATI-Gruppe wurde bei etwa 6,3 eV detektiert.

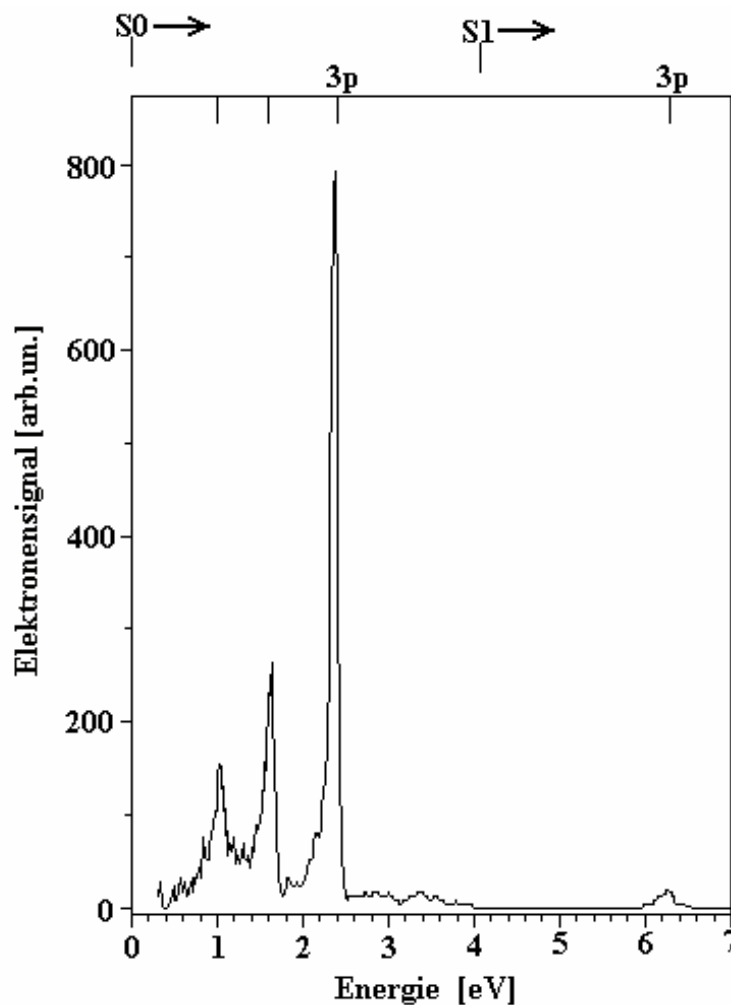


Bild 41.24 zeigt ein typisches MPI-Spektrum für atomaren Wasserstoff aufgenommen bei einer Wellenlänge von 305 nm, einer Intensität von ca.  $0,3 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> und einer Pulslänge von etwa 280 fs. Die obere Skala bezeichnet die ATI-Gruppe, die Skala darunter resonante Zustände.

Zwei weitere Maxima, die bei einer Energie von ca. 1,05 eV und 1,61 eV im Spektrum zu sehen sind, können keiner Resonanz des atomaren Wasserstoffs zugeordnet werden. Obwohl eine Simulation von U. Lambrecht [LAM 96] Bild 41.25 die gemessenen Maxima bei 2,3 eV und 6,3 eV bestätigt und weitere Elektronensignale bei ca. 1.6 eV und 3,1 eV prognostiziert, ist experimentell kein Hinweis auf ein Maximum bei 3,1 eV festzustellen. Eine Diskussion der Rechnung führte zu der Vermutung, daß der Algorithmus zur Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung für die angesprochenen Seitenmaxima verantwortlich ist und diese Maxima als Artefakte zu werten sind. Für das gemessene Maximum bei 1,05 eV ist kein theoretischer Wert zu ermitteln.

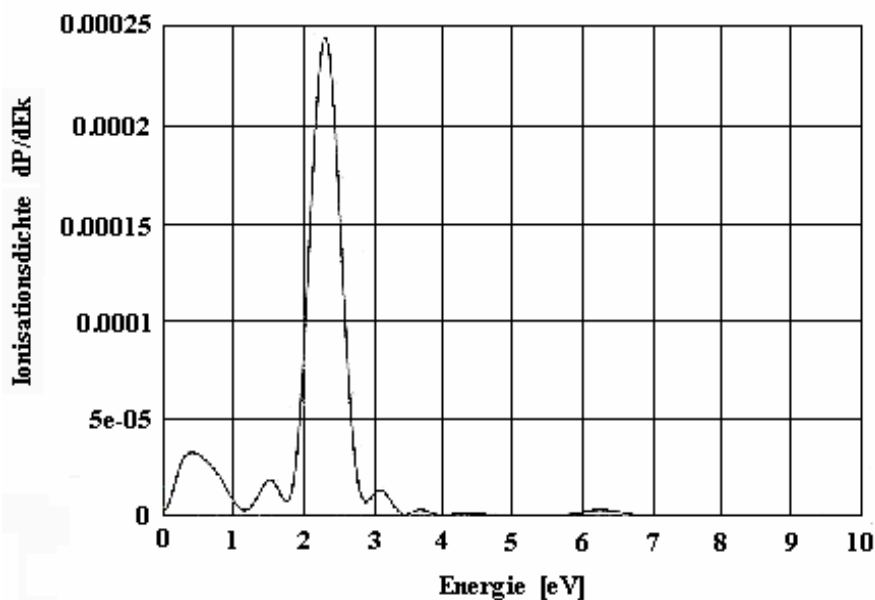


Bild 41.25: zeigt das von U.Lambrecht gerechnete Spektrum für atomaren Wasserstoff bei einer Wellenlänge von 305 nm, einer Intensität von  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> und einer Pulsdauer von 40 fs.[LAM 96]

Eine Messung von J. Verschuur [VER 89] [HEU 88] [Heu 90], der molekularen Wasserstoff mit einem Laserpuls mit  $\lambda = 309$  nm bei einer Pulsdauer von 100 fs und der Intensität von  $1 \times 10^{13}$  Wcm<sup>-2</sup> ionisiert bzw. dissoziiert hat, zeigt in dem aufgenommenen Photoelektronenspektrum unter anderem ein deutliches Elektronensignal bei etwa 1,2 eV und bei 1,6 eV. Daher kann angenommen werden, daß die im Bild 41.24 dargestellten Elektronenmaxima bei 1,05 eV und 1,61 eV das Ergebnis einer Ionisation bzw. Dissoziation von Wasserstoffmolekülen sind.

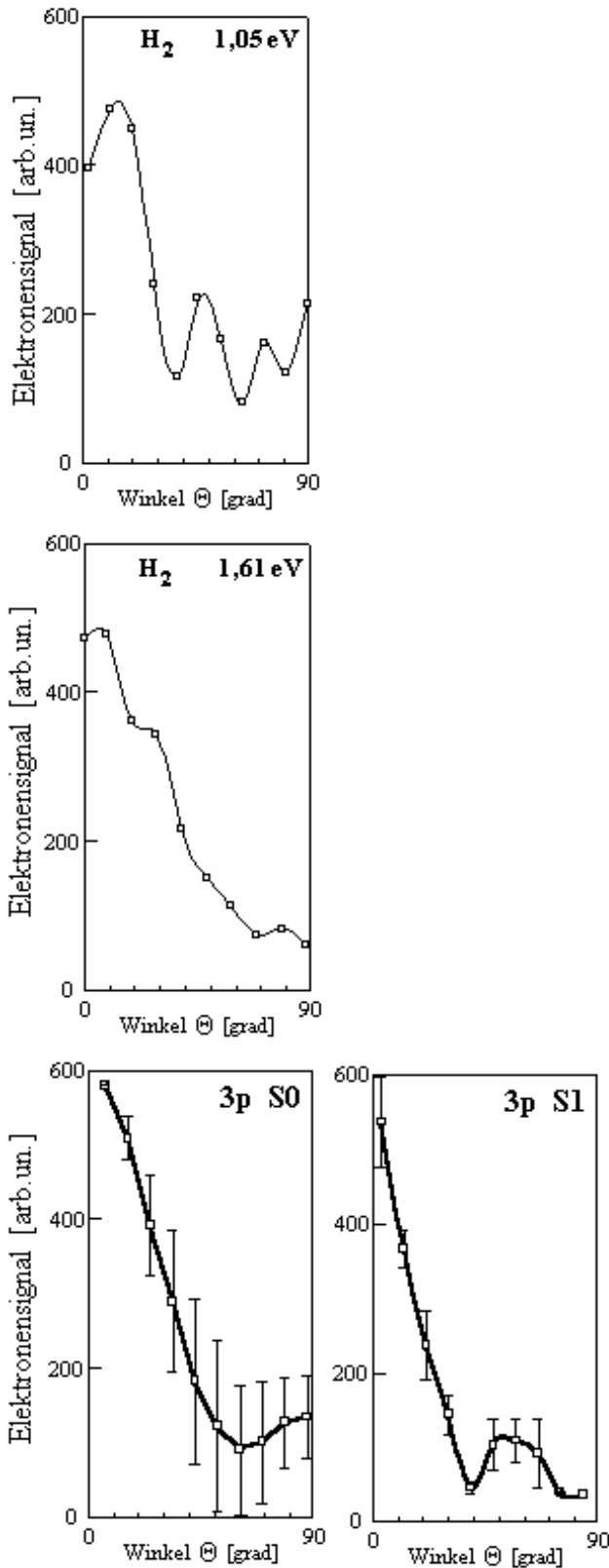


Bild 41.26 zeigt die Elektronenwinkelverteilung für atomaren Wasserstoff bei  $\lambda = 305 \text{ nm}$ ,  $I \approx 5 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$  und 280fs. Die ausgewerteten Elektronenmaxima zeigt Bild 41.24 zu sehen.



Die Maxima des Elektronensignals im Spektrum Bild 41.24 sind als Funktion der Laserpolarisationsrichtung mit einer Schrittweite von  $\Theta = 9^\circ$  aufgenommen worden, vgl. Bild 41.26. Bei der Auswertung des ersten detektierten Elektronenmaximums bei 1,05 eV fällt besonders die außergewöhnliche Form der Winkelverteilung auf. Eine ähnliche Struktur kann auch für das Spektrum bei 1,61 eV beobachtet und als Indiz für einen Prozeß von molekularem Wasserstoff gewertet werden. Das dritte Maximum ist der schon erwähnte atomare Übergang  $1s \rightarrow 3p$ . Diese Winkelverteilung, siehe unter  $3p$  S0 im Bild 41.26, hat ein dominantes Maximum bei  $\Theta = 0^\circ$  und ein weiteres bei  $\Theta = 90^\circ$  getrennt durch ein Minimum bei  $\Theta = 60^\circ$ . Es kann eindeutig eine d-Welle in der S0-ATI-Gruppe nachgewiesen werden und entsprechend eine f-Charakteristik für die nächste ATI-Gruppe. Damit ist der Drehimpuls des für die resonante Ionisation genutzten  $n = 3$  Zustandes des atomaren Wasserstoffs mit  $l = 1$ , der resonante Zwischenzustand also mit „3 p“ spezifiziert worden.

## 4.2 Rydbergatome nach dem Multiphotonenprozeß

Die Multiphotonenionisation zeigt bei steigender Laserintensität ein Sättigungsverhalten, das auf die Ionisation „aller“ im Fokus vorhandenen Atome zurückführbar ist. Bei dem Studium der MPI-Prozesse in sehr kurzen, intensiven Laserpulsen kann die Frage gestellt werden, ob für Atome die Möglichkeit besteht, in Rydbergzuständen diesen Laserpuls als Atom „überleben“ zu können. Das setzt voraus, daß es in der Ionisationsdynamik Abläufe gibt, die diese Rydbergzustände populieren aber nicht ionisieren. Durch einen nachfolgenden Ein-Photonen-Ionisationsprozeß mit einem anderen Laserpuls sollte die Signatur dieser Zustände in dem detektierten Spektrum zu beobachten sein. Das Bild 42.1 zeigt schematisch den Anregungsprozeß der Rydbergzustände und die anschließende Ein-Photonenionisation.

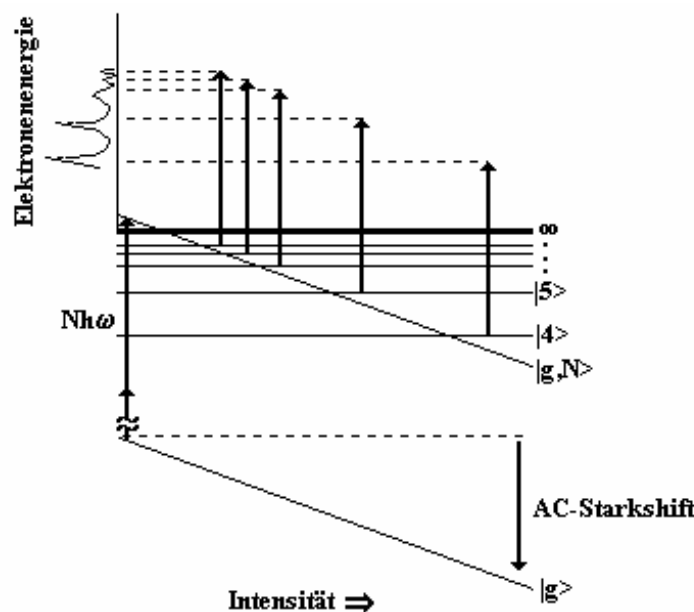


Bild 42.1 : zeigt die durch Starkverschiebung mit dem  $N$ -fachen der Photonenenergie in Resonanz gebrachten Rydbergniveaus, die im Anschluß an diese Anregung mit einem Ein-Photonenprozeß ionisiert werden. Die verschiedenen Rydbergniveaus aus denen die Ionisation stattfindet, können im MPI-Spektrum identifiziert werden. [NOO 96]

Die Vorstellung, daß der Ionisationsprozeß in *einem* Schritt vollzogen wird impliziert, daß das Anstiegs- und Abfallintervall des Laserpulses zu schnell abläuft, um die angesprochene

Substruktur im Elektronenspektrum zu erzeugen [MUL 92]. Statt also von der Vorstellung auszugehen, daß dieser Anregungsprozeß und die nachfolgende Ionisation als ein Prozeß zu sehen sind, der während des maximalen Intensitätsbereichs des Laserpulses abläuft, kann davon ausgegangen werden, daß sowohl die Anregung als auch die nachfolgende Ionisation des Atoms zu beliebigen Zeitabschnitten des Pulses passieren können. Explizit heißt das, daß während der ganzen Pulsdauer, d.h. zu jeder Intensität, atomare Zustände durch die AC-Starkverschiebung mit dem  $n$ -fachen der Photonenenergie resonant sein und diese Zustände dann bevölkert werden können. Diese angeregten Atome haben anschließend zu einem beliebigen Zeitpunkt innerhalb des Laserpulses die Möglichkeit der Ionisation, wobei die Photoelektronen, falls sie aus demselben Zustand ionisieren, über die gleiche kinetische Energie verfügen, vgl. Bild 42.2. [FED 91]

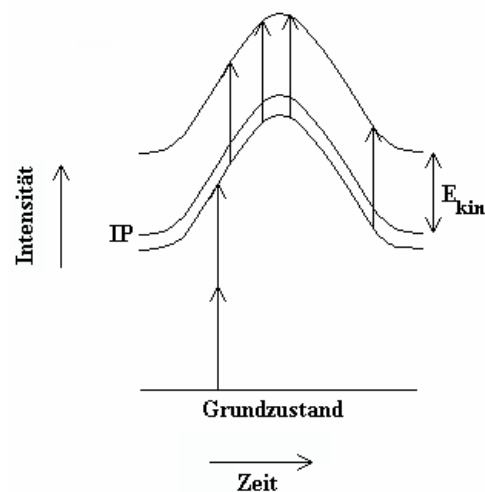


Bild 42.2 : Anregung und Ionisation aus dem Grundzustand während eines Laserpulses. Ganz gleich zu welchem Zeitpunkt der angeregte Zustand ionisiert wird, ist die kinetische Energie  $E_{kin}$  des Photoelektrons dieselbe [MUL 92].

In den im folgenden beschriebenen und diskutierten Experimenten ist neben der bisher verwendeten linear polarisierten Laserstrahlung als eine weitere Option ein zirkular polarisiertes Photonenfeld für den Multiphotonenprozeß und den Nachweis von Rydbergatomen verwendet worden. Die Reaktion eines Atoms auf die Polarisationsrichtung eines äußeren Feldes ist bereits in Kapitel 4.1 ausführlich beschrieben worden. Für die hier durchgeführten Messungen mit zirkular polarisierter Strahlung gelten folglich Auswahlregeln, die im Gegensatz zu linear polarisierter Strahlung  $\Delta m$  mit  $\pm 1$  festlegen. Geht man von einem Wellenvektor des Photons in  $z$ -Richtung aus, so folgt  $\mathbf{e}_{k,1} = 1/2(e_x \pm e_y)$  und  $r\mathbf{e}_{k,1} = 1/2(x \pm iy)$  mit „+“ für die rechte Drehrichtung. Derselbe Zusammenhang lautet in sphärischen Koordinaten :

$$r e_{\bar{k}l} = -r \left( \frac{4p}{3} \right)^{1/2} Y_{l\pm 1}(\Theta, \Phi) \quad (42-1)$$

wobei der  $Y_{l\pm 1}(\mathbf{q}, \mathbf{f})$  der winkelabhängige Teil der Wellenfunktion ist [BET57]. Dieser winkelabhängige Teil des Dipolmatrixelements ist proportional zu  $\langle Y_{l_N m_N} | Y_{l\pm 1} | Y_{l_{N-1} m_{N-1}} \rangle$  und ist nur für  $\Delta l = \pm 1$  und der Auswahlregel für zirkulare Polarisation  $\Delta m = \pm 1$  ungleich Null.

Trägt man das Ergebnis dieser Rechnung als erlaubte Übergangskanäle des MPI-Prozesses in einer Graphik auf, so werden die eingeschränkten Möglichkeiten der Anregungsschritte für zirkulare Strahlung deutlich. Ein explizites Beispiel am Wasserstoffatom zeigt für eine Zwei- bzw. Vierphotonenabsorption vom Grundzustand S in den angeregten S-Zustand, vgl. Bild 42.3, daß dieser Schritt mit zirkular polarisierter Strahlung nicht möglich ist, weil in diesem Fall das Ergebnis für  $\Delta m$  eben Null wäre, vgl. [BLO 74].

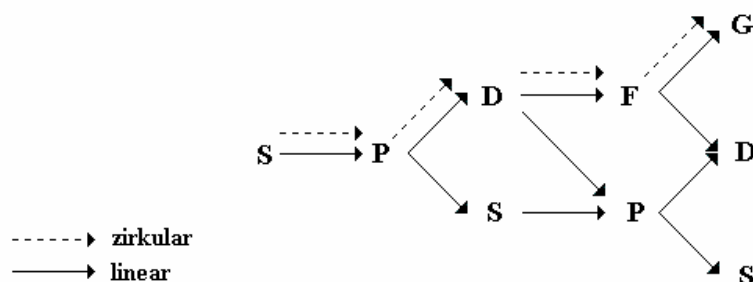


Bild 42.3 : zeigt Übergangskanäle für die Auswahlregeln der möglichen Drehmomente für zirkuläre und lineare Strahlung. [LAM 76]

Die Auswahlregeln für zirkulare Strahlung erklären also das Fehlen einer Substruktur im Photoelektronenspektrum, da die Anzahl der möglichen Übergangskanäle stark reduziert ist. Daher ist auch der Betrag der totalen Ionisationsrate im Vergleich zur Situation für linear polarisierte Strahlung wesentlich niedriger und im Fall zirkularer Polarisation maximal für Intensitäten, für die der AC-Starkshift die Photonenenergie  $n\hbar\omega$  in Bereiche ohne erlaubte resonante Zustände verschiebt, vgl. P. Agostini et al. [AGO 89], der, wie H. Bucksbaum et al. und auch M. Bashkansky et al. dieses Verhalten als eine direkte Ionisation vom Grundzustand

ins Kontinuum deutet [BUC 90] [MCI 86]. Weiterhin kann die energetische Breite des Elektronenmaximums für die zirkulare Polarisation für jede ATI-Gruppe als Hinweis auf das Intensitätsintervall der Laserstrahlung interpretiert werden, das im Fokusbereich durchlaufen wird.

Die Lebensdauer von Rydbergatomen, die sich nach der Anregung weiterhin im Laserpuls befinden, ist zeitlich stark begrenzt, da für einen kurzen Zeitraum weiterhin Photonen zur Ionisation zu Verfügung stehen. Eine erste Abschätzung verbindet die Lebensdauer mit der Pulslänge des Lasers. Bei differenzierter Betrachtung ist der Anregungszustand des Rydbergatoms mitentscheidend für den folgenden Ionisationsprozeß. Befindet sich das Atom in einem niedrigen Anregungszustand, wird die Anzahl der den Puls „überlebenden“ Rydbergatome durch die Ionisationsrate des Zustandes und der Pulslänge des Lasers bestimmt: kommt es erst im Intensitätsmaximum des Laserpulses zu Anregung, sinkt die Wahrscheinlichkeit des angeregten Atoms in der abfallenden Pulsflanke ionisiert zu werden. Rechnungen von P. Agostini und L.F. DiMauro [DIM 93] zeigen für Wasserstoff bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 618$  nm und einer (7+1)-Photonenionisation über den 4f Zwischenzustand, daß bis zu 17,5% der Rydbergatome in einem Laserpuls mit 120 fs bei einer Intensität überleben, die für die Resonanzbedingung des 4f Zustandes nötig ist, d.h. das in einem ultrakurzen Laserpuls die Zeit für eine Sättigung der Ionisation prinzipiell zu kurz ist.

Für höhere Anregungszustände muß zusätzlich der Aspekt berücksichtigt werden, daß die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons in Kernnähe und somit die Ionisationswahrscheinlichkeit während des Laserpulses abnimmt.

Die Fluoreszenz-Lebensdauer  $\tau$  der Rydbergzustände, die für den Zeitraum zwischen Anregungs- und Probelaserpuls relevant ist, ist für das Wasserstoffatom proportional zur Hauptquantenzahl  $n$  :  $\tau \propto n^3$ , zur Drehimpulsquantenzahl  $l$  :  $\tau \propto l^2$  und proportional zur energetischen Differenz zwischen den am Übergang beteiligten Niveaus :  $\tau \propto \nu^3$ . Wenn für den Übergang alle Auswahlregeln gelten, ergeben sich folgende mittlere Lebensdauern, vgl. [HEL 64] und [MOR 91]:

Hauptquantenzahl n	Lebensdauer $\tau$ [sec]
2	$0,2 \times 10^{-8}$
3	$1 \times 10^{-8}$
4	$3,5 \times 10^{-8}$
5	$9 \times 10^{-8}$
6	$2 \times 10^{-7}$
⋮	⋮
30	$3 \times 10^{-5}$
⋮	⋮

### 4.2.1 Der experimentelle Aufbau

Mit dem in Kapitel 3.2 beschriebenen Lasersystem wird wie bisher eine Multiphotonenionisation angeregt. Atome, die in diesem Prozeß nicht ionisieren und in hohen Rydbergzuständen erhalten bleiben, können durch einen nachfolgenden, verzögerten Probelaserpuls ionisiert werden.

Der experimentelle Aufbau für der Nachweis dieser Photoelektronen ist mit einem Gitter in der Vakuumkammer zwischen dem Fokusbereich des Lasers und der Flugstrecke erweitert worden, um die bei dem MPI-Prozeß entstehenden Photoelektronen abzuziehen. Ein Potential von ca. + 60 V, das an diesem Gitter anliegt, wird mit einem vom Lasersystem synchronisierten Schalter gesteuert, siehe Bild 42.5, wobei sich der Schaltvorgang in einem Zeitfenster zwischen dem den Multiphotonenionisationsprozeß initiierenden Laserpuls und einem nachfolgenden Probelaserpuls befindet, vgl. Bild 42.4. Diese apparative Änderung macht einen separierten und äußerst sensiblen Nachweis der Photoelektronen möglich, die durch die nachfolgende Ionisation der Rydbergatome entstehen.

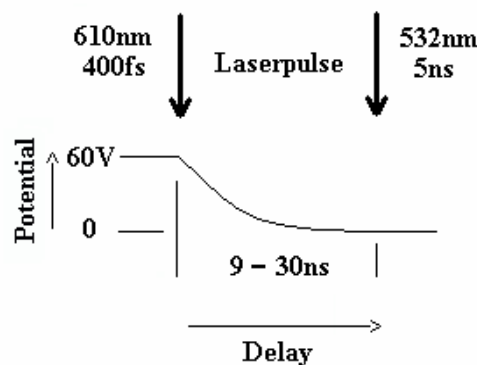


Bild 42.4 : zeigt den zeitlichen Abstand der Laserpulse und den Abfall der Abzugsspannung nach dem Abschaltvorgang

Nachdem dieses Abzugsfeld abgeschaltet ist, erreicht der zeitlich verzögerte Probelaserpuls das Volumen, in dem vorher die Multiphotonenionisation stattgefunden hat. Dieser YAG – Laser ( Probelaser ) mit einer verdoppelten Wellenlänge von  $\lambda = 532 \text{ nm}$ , einer Energie von ca. 30 mJ und einer Pulsdauer von 5 ns stellt einen Photonenfluß mit ausreichend hoher Dichte zur Verfügung, sodaß eine gesättigte Ein-Photon-Ionisation der Rydbergatome gewährleistet ist.

Die Geometrie der Strahlführung des Anregungs- und des Probelasers ist im Bild 42.5 schematisch dargestellt. Deutlich zu sehen ist der gegenüberliegende Eintritt des Anregungs- und Probelasers in die Vakuumkammer mit dem Ziel, eine unterschiedliche Fokussierung zu ermöglichen, da eine allein durch den Probelaser ausgelöste Multiphotonenionisation durch die geeignete Wahl der fokussierenden Optik verhindert werden muß.

Mit Hilfe einer im Strahlengang des Anregungslasers positionierten  $\lambda/2$  Verzögerungsplatte kann die Polarisations Ebene orthogonal zur Detektorebene gedreht werden. Da ein wesentlicher Anteil der Photoelektronen das ionisierte Atom in Richtung des E-Vektors des äußeren Feldes verlassen, wird hiermit eine weitere Reduktion der Anzahl der detektierten Elektronen aus dem MPI-Prozeß erreicht.

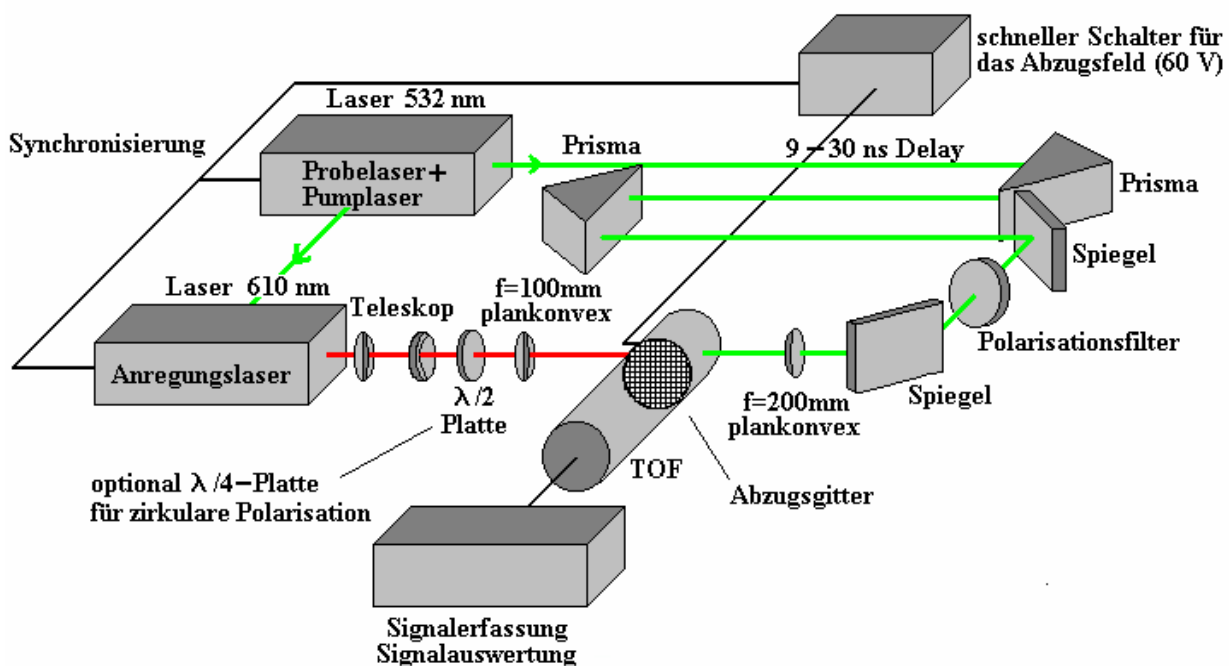


Bild 42.5 : zeigt den Aufbau des Experiments zum Nachweis hochangeregter Atome, die nach der Multiphotonenionisation noch nachweisbar sind. Ein Probelaser mit 532 nm, der mit einem Delay von 30 ns in das Wechselwirkungsvolumen eintritt, ionisiert die „überlebenden“ Atome mit einem Ein-Photonen-Schritt. Ein wichtiger Bestandteil dieser Anordnung ist der schnelle Schalter für das Elektronen – Abzugspotential.

Für weitergehende Untersuchungen kann in einer vergleichbaren Messanordnung die Strahlungspolarisation geändert werden. Eine  $\lambda/4$  Verzögerungsplatte im Strahlengang des Anregungslasers, vgl. Bild 42.5, erlaubt die Überführung der linearen in eine zirkulare Polarisation und ermöglicht es, so die Auswirkungen der geänderten Auswahlregeln und die daraus resultierenden Ionisationsprozesse für zirkulare Polarisation zu analysieren.

Grundsätzlich ist mit dem bisher beschriebenen experimentellen Aufbau eine sehr wirkungsvolle Separation der Photoelektronen aus dem MPI-Prozeß und der Ionisation der Rydbergatome möglich - allerdings mit der Konsequenz, daß eine quantitative Abschätzung der „überlebenden“ Rydbergatome nicht mehr möglich ist.

Eine weitere Messung, bei der ein MPI-Spektrum mit dem gleichen Elektronenspektrum inklusiv des Elektronensignals der nachfolgenden Ionisation der Rydbergatome verglichen wird, kann für eine quantitative Bestimmung der „überlebenden“ Rydbergatome benutzt werden.

Während der Messung am Xenon wird die Vakuumkammer homogen mit einem Druck von  $3 \times 10^{-6} \text{ mbar}$  gefüllt während für die Messungen mit atomarem Wasserstoff ein effusiver Wasserstoffatomstrahl aus einer Kapillare einen Gesamtkammerdruck von etwa  $6 \times 10^{-6} \text{ mbar}$  in Abhängigkeit vom Arbeitsbereich der Mikrowellenentladung erzeugt. Die Dichte des Atomstrahls kann, vgl. Kap. 3.1, mit etwa  $3 \times 10^{10}$  Teilchen pro  $\text{cm}^3$  bestimmt werden.

Da einige der hier untersuchten MPI-Prozesse in einem elektrischen Feld stattfinden ist eine Bemerkung sinnvoll, unter welchen Bedingungen eine Feldionisation der den Prozeß „überlebenden“ Rydbergatome möglich ist. Zu dem Coulombpotential des Kern wirkt diametral ein elektrisches Feld, sodaß mit zunehmender Hauptquantenzahl die zur Ionisation nötige Feldstärke abnimmt. Für das Wasserstoffatom beträgt die Feldstärke für eine DC-Feldionisation  $5,1 \times 10^9 \text{ V/cm}$  für das  $n = 1$  Niveau und  $78 \text{ V/cm}$  für  $n = 90$ , vgl. [MOR 91].

Das Feld, das in diesem Experiment verwendet wurde, hat eine Feldstärke von ca.  $15 \text{ V/cm}$ . Eine Feldionisation der Rydbergzustände ist demnach erst für Zustände mit Hauptquantenzahlen  $n \gg 100$  möglich.



## 4.2.2 Der Nachweis von Rydbergatomen nach dem MPI-Prozeß am Xenon

Die in Bild 42.6 zu sehenden Spektren zeigen das Ergebnis des Nachweises von Rydbergatomen nach einem Multiphotonenprozeß in Xenon. Deutlich erkennbar sind die identifizierten 4f, 5f und 6f-Resonanzen, Abbildung 42.6a, wobei die Zustände mit  $n > 10$  nicht mehr auflösbar sind. Obwohl die Auswahlregeln auch die Anregung von  $p$ - und  $h$ -Zuständen durch einen 6-Photonenprozeß aus dem Grundzustand  $(5p)^6$  erlauben, werden diese Zustände im Spektrum nicht beobachtet. Grund für dieses Verhalten könnte die ausgezeichnete Rolle der  $f$ -Zustände sein, die bei großem AC-Shift und daher bei großer Intensität mit einem maximalen Signal andere Prozesse dominieren. Die Photoelektronen, die als Folge des MPI-Prozesses das Atom verlassen haben, Bild 42.6a, werden für die folgende Messung durch das beschriebene Gitter mit einem Potential von + 60 absorbiert und die durch den um 9 ns verzögerten Puls des Probelaser produzierten Photoelektronen aus dem Ionisationsprozeß der Rydbergatome separiert nachgewiesen.

Semiklassisch befinden sich die Elektronen der Rydbergatome durch die Anregung auf einer Keplerbahn mit großem Radius, sodaß der Aufenthaltsort im wesentlichen nicht kernnah und damit eine Ionisation aufgrund der Impulserhaltungsbedingung unwahrscheinlich ist. Um trotz dieser Situation eine Ionisation zu erreichen, muß beispielsweise für den  $n = 10$  Zustand ein Photonenfluß realisiert werden, der mindestens eine Stärke von  $5,3 \text{ J/cm}^2$  erreicht [MUL93].

Bild 42.6b zeigt das Spektrum dieser Photoelektronen, die aus den Rydbergzuständen 4f, 5f, 6f und den Bereich mit  $n > 10$  ionisiert wurden. Die Verschiebung der Elektronenmaxima um 0,3 eV, die im Vergleich mit dem Teilbild 42.6a festzustellen ist, resultiert aus der Wellenlänge des Probelasers, 532 nm (2,335 eV). Für die energetische Position dieser Maxima gilt daher :

$$h\mathbf{n}_{\text{Probe}} - h\mathbf{n}_{\text{MPI}} = +0.3\text{eV} \quad (42-2)$$

Für eine weitere Messung wurde die Polarisation des Lasers für die Multiphotonenionisation orthogonal zur Detektorebene gedreht. Da nur für geradzahlige Drehmomentzustände eine Emission der Photoelektronen orthogonal zur Richtung des E-Vektors des Laserfeldes möglich ist, ist das Signal der aus dem MPI-Prozeß resultierenden Photoelektronen vermindert und somit eine weitere Verbesserung der Separation des Meßsignals der ionisierten Rydbergatome erreicht worden, Bild 42.6c. Für beide Nachweismethoden für Rydbergatome, Abb. 42.6b und 42.6c, gilt allerdings die Einschränkung, daß eine quantitative Bestimmung der in Rydbergzuständen „überlebenden“ Xenonatome nicht erfolgen kann.

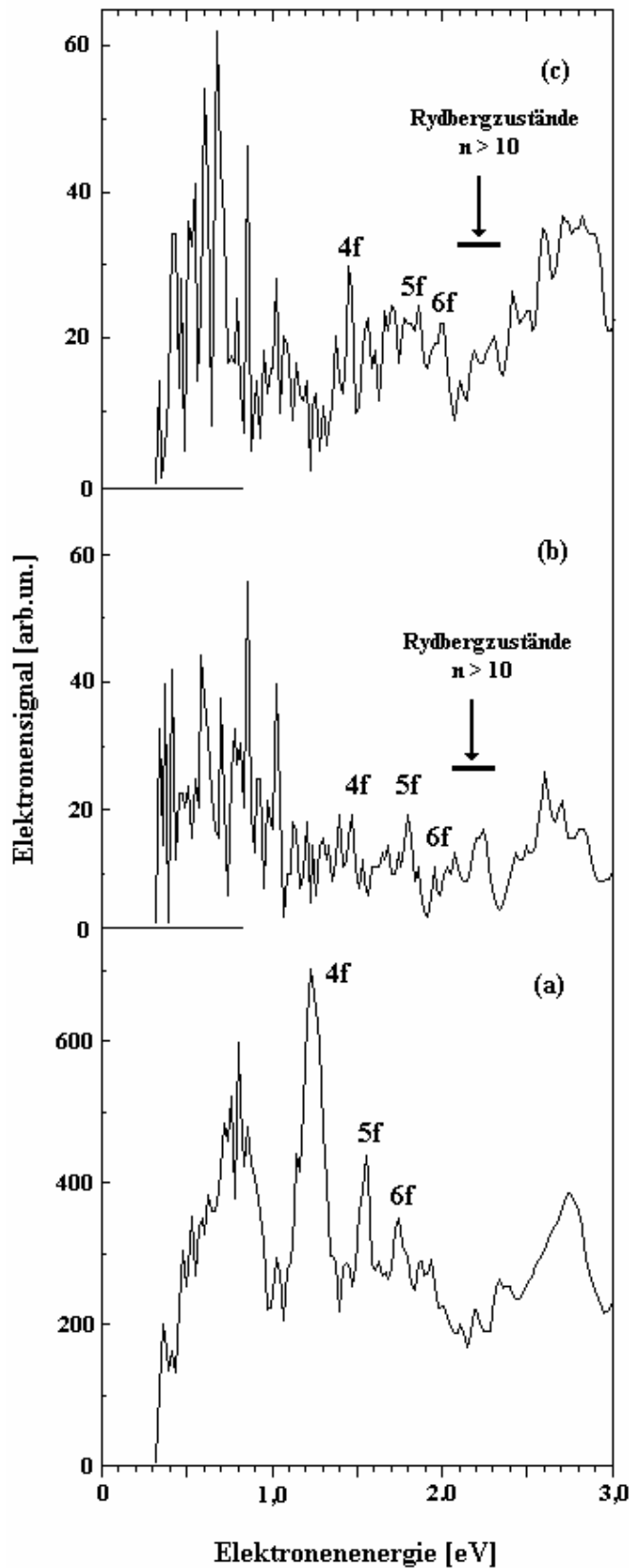


Bild 42.6(a) zeigt ein typisches Xenon MPI-Spektrum für 610 nm,  $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  bei 400 fs Pulslänge. (b) ein Abzugsfeld mit + 60 V absorbiert die Photoelektronen des MPI-Prozesses. Die "überlebenden" Atome in Rydbergzuständen werden durch einen Laserpuls mit 532 nm,  $1 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$  bei 5 ns Pulslänge nach 30 ns Delay ionisiert. (c) dieses Spektrum ist identisch mit (b). Allerdings ist der MPI-Prozeß mit einer um 90° gedrehten Polarisation angeregt worden mit dem Ziel, die Detektion weiterer Photoelektronen aus diesem Prozeß zu unterdrücken.

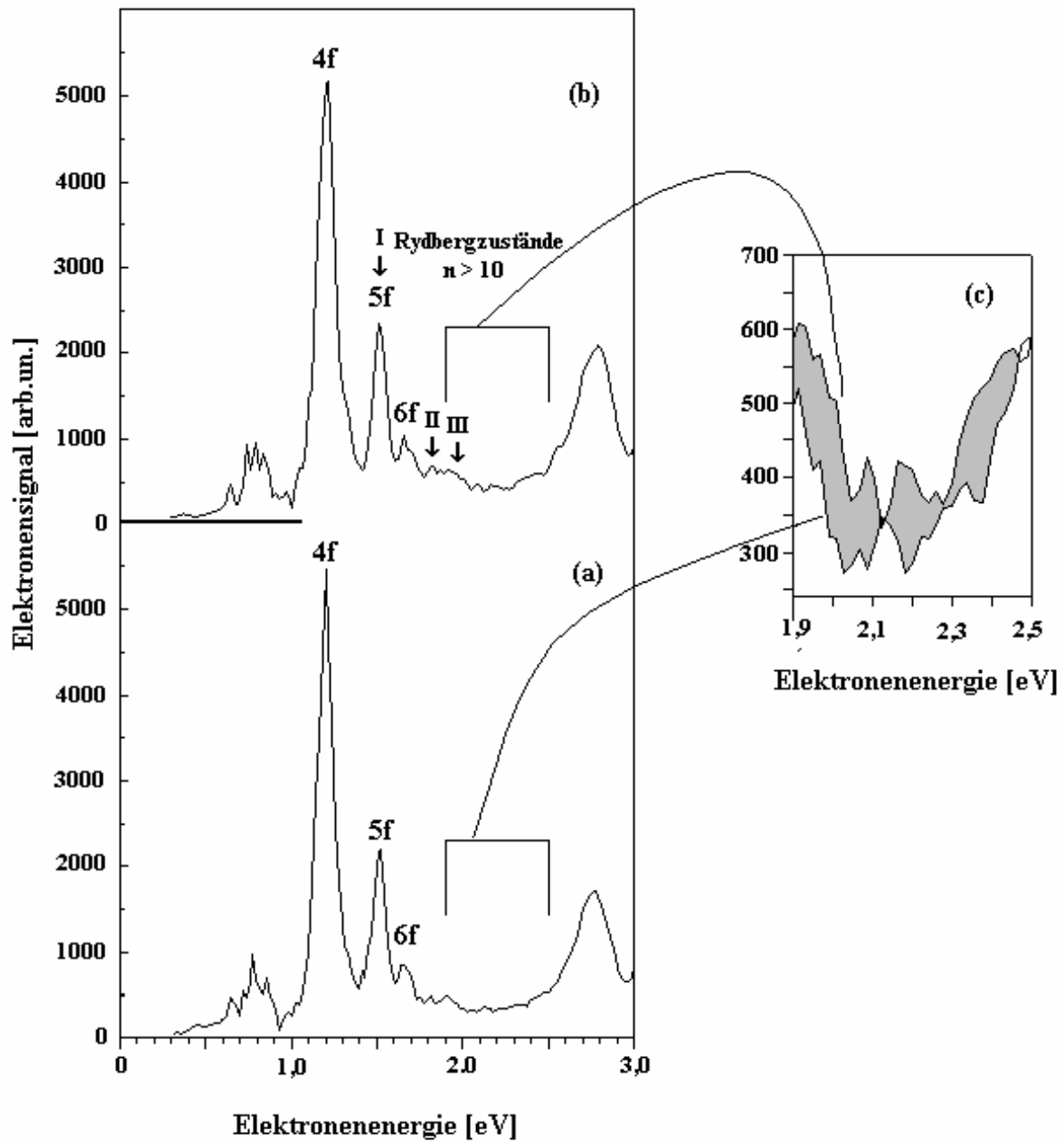


Bild 42.7 : zeigt ( a ) ein MPI-Spektrum von Xenon für linear polarisierte Strahlung mit 610 nm, der Pulslänge von 400 fs und einer Intensität von  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ( b ) ein gleiches Spektrum mit einem nachfolgenden um 30 ns verzögerten Probelaserpuls mit 532 nm,  $1 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> und 5 ns. In einer vergrößert dargestellten Graphik ( c ) eines Teilbereichs ist die Differenz beider Spektren als schattierte Fläche verdeutlicht. Die mit einer Pfeilmarkierung und I bis III gekennzeichneten Energiewerte der Kurve ( b ) weisen auf Maxima der Ionisation der Rydbergatome 4f, 5f und 6f hin.

Um das absolute Verhältnis der Photoelektronen aus der Ionisation der Rydbergatome und der Photoelektronen aus dem Multiphotonenionisationsprozeß zu bestimmen, ist der Nachweis aller entstehenden Photoelektronen notwendig. Der dadurch ermöglichte direkte Vergleich der Spektren, die mit und ohne Probelaserpuls entstanden sind, ist im Bild (42.7a), (42.7b) dargestellt und zeigt, daß die außerordentlich kleine Menge von Rydbergatomen, die in den Zuständen 4f, 5f, 6f und  $n > 10$  überlebt haben, kaum nachweisbar ist. Als sehr ungünstig erweist sich zudem die Wellenlänge des Probelasers, die eine Verschiebung des Elektronensignals der Rydbergatome in unmittelbare Nähe der Elektronenmaxima des MPI-Prozesses verursacht (vgl. Markierungen I-III in 42.6b). Aus diesem Grunde ist die Aufnahme dieser Photoelektronen ohne die Separation der MPI-Photoelektronen kaum möglich, wie eine vergrößerte Gegenüberstellung im Bild 42.7c für den Bereich  $n > 10$  verdeutlicht.

Eine Integration beider Graphen in dem Intervall 0,65 eV bis 2,34 eV führt zu der Abschätzung, daß etwa 7 % der Atome in Rydbergzuständen den MPI-Prozeß „überleben“.

Eine weitere Untersuchung an Xenon wurde mit zirkular polarisierter Strahlung und unveränderter Wellenlänge, Pulsdauer und Intensität durchgeführt. Die bereits diskutierten Auswahlregeln, die deutlich weniger Anregungskanäle für zirkulare Polarisierung ( $\Delta m = 1$ ) zulassen [AGO 89], führen zu einem Spektrum, dessen ATI-Gruppen keine Substruktur des Elektronensignals sondern ein energetisch sehr breites Maximum zeigen, vgl. Bild 42.8. Nach Messungen von Bucksbaum und Schumacher [BUC90] kann bei einer Laserintensität von ca.  $1 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$  und der entsprechenden AC-Starkverschiebung ein 6-Photonenübergang initiiert werden, sodaß die Niveaus 6h, 7h und 8h populiert werden können, vgl. auch Messungen von H.G. Muller et al. [MUL 93]. Der niedrigste, mit 6 Photonen erreichbare Zustand ist der  $5p^5(^2p_{3/2})6h$ , da sich die Xenon - Valenzelektronen in einem p-Zustand befinden.

Bei der Maximalintensität des Laserpulses von etwa  $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ist zusätzlich ein 7-Photonenübergang mit der Anregung der Rydbergniveaus mit  $n \geq 6$  und  $l = 5$  möglich.

Vergleicht man nun das durch einen linear polarisierten Laserpuls erzeugte Elektronenspektrum mit dem Photoelektronenspektrum eines zirkular polarisierten Pulses, so kann festgestellt werden, daß das maximale Elektronensignal nicht auf einen Bereich möglicher Resonanzen zurückführbar ist, sondern in einem Energieintervall detektiert wird, zu dem keine erlaubten resonanten Zwischenzustände existieren [SCU90]. Da die Photoelektronenverteilung in direktem Zusammenhang mit der Laserintensität bzw. der Intensitätsentwicklung im Wechselwirkungsbereich steht, ist eine deutliche Änderung des Spektrum bei unterschiedlichen Laserintensitäten zu erwarten.

Messungen zu verschiedenen Laserleistungen von Schumacher et al. [SCU90] bestätigen die Leistungsangabe des Laserpulses, mit dem die hier diskutierten Messungen durchgeführt wurden.

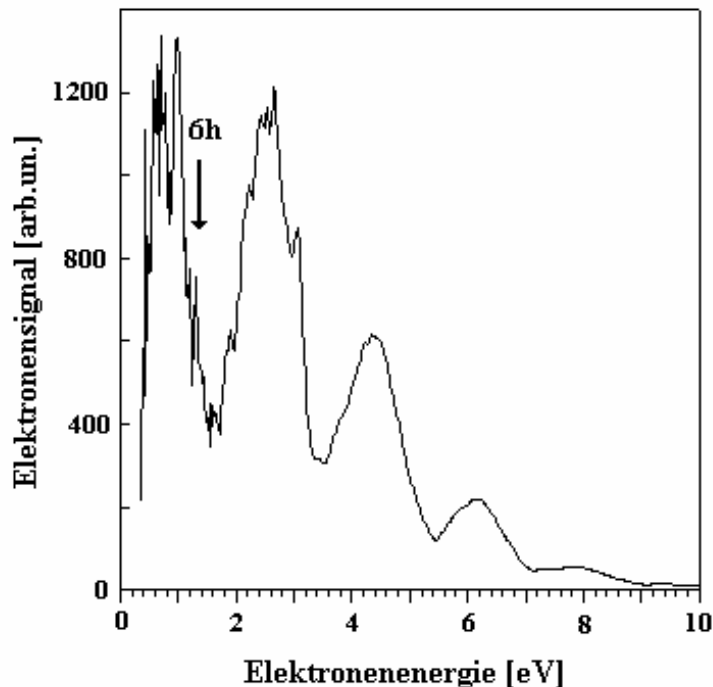


Bild 42.8 : zeigt ein Xenon ATI - Photoelektronenspektrum. Der Anregungslaser emittiert bei 610 nm, einer Intensität von ca.  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, einer Pulsdauer von 400 fs und mit zirkularer Polarisation.

Im Bild 42.9a ist die gemessene Multiphotonenionisation von Xenon mit einem zirkular polarisierten Laserpuls für den Bereich bis 3 eV als Referenz für die folgende unter 42.9b dargestellte Messung mit dem zusätzlichen Probelerpuls zu sehen. Auffällig an dieser Kurve ist ein weiteres Elektronenmaximum bei ca. 1,55 eV mit einer energetischen Breite von 0,2 eV. Dieses durch die Nachionisation verursachte Maximum ist der Nachweis für Rydbergatome, die aus Zuständen mit  $n \geq 6$  und dem Drehimpuls  $l = 5$  (6-Photonenresonanz) oder  $l = 6$  (7-Photonenresonanz) ionisiert werden, wobei die Breite dieses Maximums darauf hindeutet, daß mehrere Zustände in diesem Bereich nachgewiesen werden. Der Vergleich mit dem Spektrum 42.9a zeigt, daß in einem Abstand von  $-0,3$  eV (vgl. Glg. 42-2) in der Flanke der S0-ATI-Gruppe ein zugehöriges Elektronenmaximum lokalisiert werden kann, das offenbar mit dem in 42.9b gemessenen Signal korreliert (Pfeilmarkierung). Dieser im Spektrum 42.9a zu sehende Zustand kann offenbar von dem anregenden fs-Laser als Folge eines zu geringen Photonenflusses nicht vollständig ionisiert werden und wirkt daher als ein der Ionisation entgegenwirkender Zwischenschritt, der in der Literatur als „population trap“ bezeichnet wird [MUL93] [MAU92] [BUC93]. Es ist die Anregung eines Rydbergzustandes, aus dem das Elektron nicht durch denselben Laserpuls ins Kontinuum ionisiert werden kann.

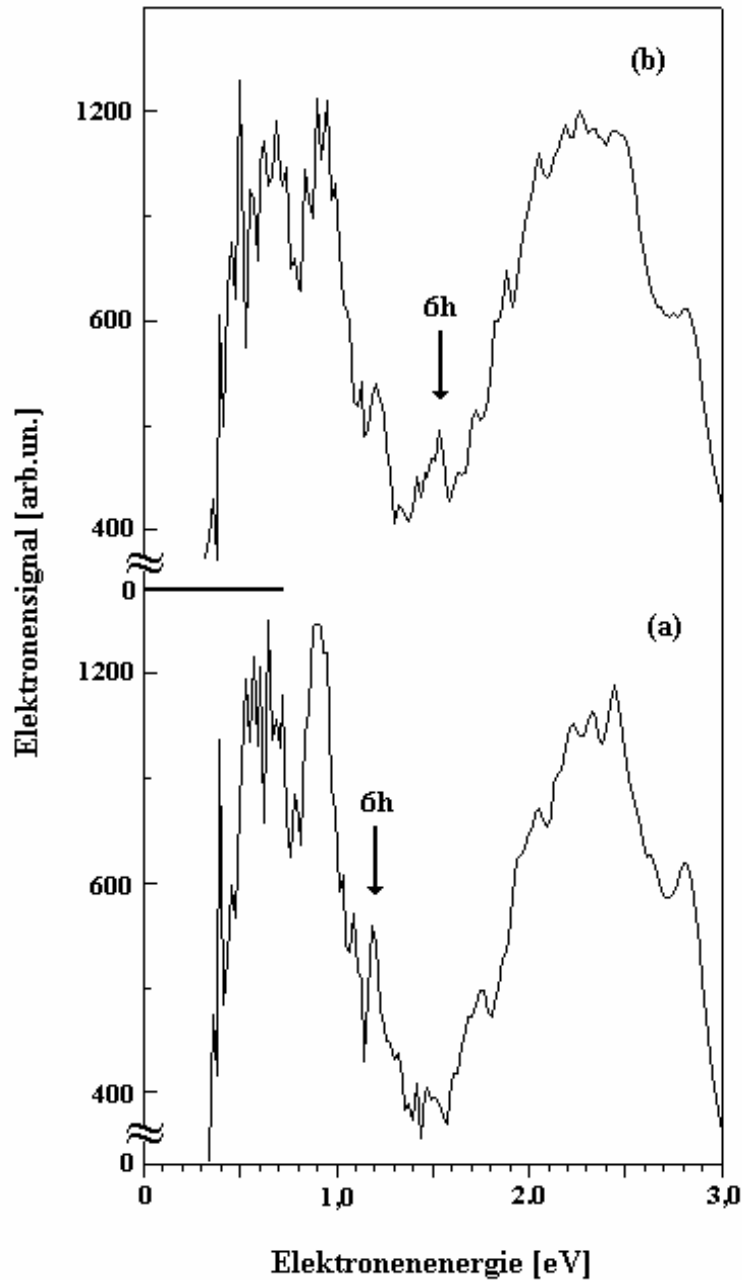


Bild 42.9 : ( a ) zeigt ein MPI-Spektrum von Xenon für 610 nm,  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> und 400 fs Pulsdauer und zirkularer Polarisation. Im Teilbild ( b ) erfolgt zusätzlich eine um 9 ns verzögerte nachträgliche Ionisation durch einen Laserpuls mit 532 nm,  $1 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> und 5 ns Pulslänge. Deutlich ist ein Elektronenmaximum erkennbar (Pfeilmarkierung), das auf Rydbergzustände mit  $n \geq 6$  und Drehimpulsen  $l = 5$  und  $l = 6$  schließen läßt.

Da beide Spektren im Bild 42.9 unter gleichen Bedingungen gemessen wurden, kann ein direkter Signalvergleich Aufschluß darüber geben, wie hoch der Anteil der den Multiphotonenprozeß in Rydbergzuständen überlebenden Atome sein kann. Aus einer Integration beider Kurven über den Energiebereich bis 10 eV ergibt sich ein Wert von 6 % , der in diesem Fall ausschließlich für einen kleinen Raumwinkel in Detektorrichtung bestimmt wurde und demnach nur als maximaler Wert bezüglich einer winkelintegrativen Messung verstanden werden kann.

Vergleichbare Messungen, die von H.G. Muller et al. bei ca. 600 nm und einer Pulsdauer von 100 fs an Xe durchgeführt wurden [MUL92], hatten zunächst als Ergebnis, daß bis zu 50% der Atome in niedrigen Rydbergzuständen ( $n < 8$ ) nach dem MPI-Puls detektierbar waren. Aufgrund einer nachfolgenden, erneuten Messung von de Boer [DEB94] [BUC 93] mußte dieser Wert auf etwa 1% - 6% korrigiert werden und kann daher die Größenordnung der hier vorgestellten Ergebnisse für Xenon stützen – andererseits kann der Effekt bei kürzeren Pulsen mit weniger Photonenfluß größer sein.

### 4.2.3 **Der Nachweis von Rydbergatomen nach dem MPI-Prozeß am Wasserstoff**

Der Nachweis von Wasserstoffatomen, die durch den Multiphotonenprozeß nicht ionisiert werden und in Rydbergzuständen erhalten bleiben, ist in dieser Meßreihe erstmals gelungen. In dem verwendeten Versuchsaufbau wurde die in Kap. 4.2.1 beschriebene Möglichkeit genutzt, die Photoelektronen des MPI-Prozesses zu absorbieren, um die mit einem um 9 ns bzw. 30 ns verzögerten Probelaserpuls erzeugten Photoelektronen der ionisierten Rydbergatome separiert nachweisen zu können, vgl. Bild 42.10. Eine weitere Verringerung des Signals des MPI-Prozesses wurde durch die Drehung der Polarisationssebene des Anregungslasers um  $90^\circ$  relativ zur Detektorachse erreicht, vgl. Kap.4.2.2. Während das Teilbild 42.10a ein typisches Multiphotonisationspektrum von atomarem Wasserstoff für einen Laserpuls mit 610 nm,  $1 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  und 400 fs Pulsdauer zeigt, sind im Spektrum 42.10b die nachgewiesenen Photoelektronen der ionisierten Rydbergatome zu sehen, die von einem Restsignal des MPI-Prozesses überlagert sind. Es ist hier eine energetische Verschiebung der aus der Ionisation der Rydbergzustände resultierenden Photoelektronen um +0,3 eV entsprechend der kürzeren Wellenlänge des Probelasers zu berücksichtigen, siehe Gleichung 42-2. Im Vergleich zum Spektrum 42.10a kann ein zusätzliches Maximum bei etwa 2,35 eV mit einer energetischen Breite von etwa 0,2 eV identifiziert werden, das mit einer Ionisation aus mehreren Zuständen mit  $n \geq 10$  korreliert.

Um eine Aussage über das absolute Verhältnis des Ionisationssignals der Rydbergatome zu dem des MPI-Prozesses machen zu können, ist ein Spektrum nötig, in dem das MPI-Signal und das Spektrum der nachfolgenden Ionisation der Rydbergatome additiv detektiert werden. Das im Bild 42.11 dargestellte Ergebnis macht diesen Vergleich möglich, wobei unter 42.11a das ursprüngliche Multiphotonenspektrum und unter 42.11b das erforderliche additive Spektrum zu sehen sind. Da der Anteil der Photoelektronen der Rydbergatome sehr gering ist, wird die Identifikation der Photoelektronen aus niedrigen Rydbergzuständen innerhalb eines solchen additiven Spektrums kaum möglich sein. Erst für Zustände mit  $n \geq 10$  kann ein deutliches, 0,2 eV breites Signal bei einer Energie von ca. 2,35 eV nachgewiesen werden. Nach der Integration beider Kurven im Intervall 0,3 eV bis 2,4 eV kann von etwa 5 % der Photoelektronen ausgegangen werden, die auf die Ionisation von Rydbergatomen zurückführbar sind. Wie auch für Xenon ist diese Messung auf eine Raumrichtung beschränkt und daher eine genauere Bestimmung dieses Wertes nicht möglich.



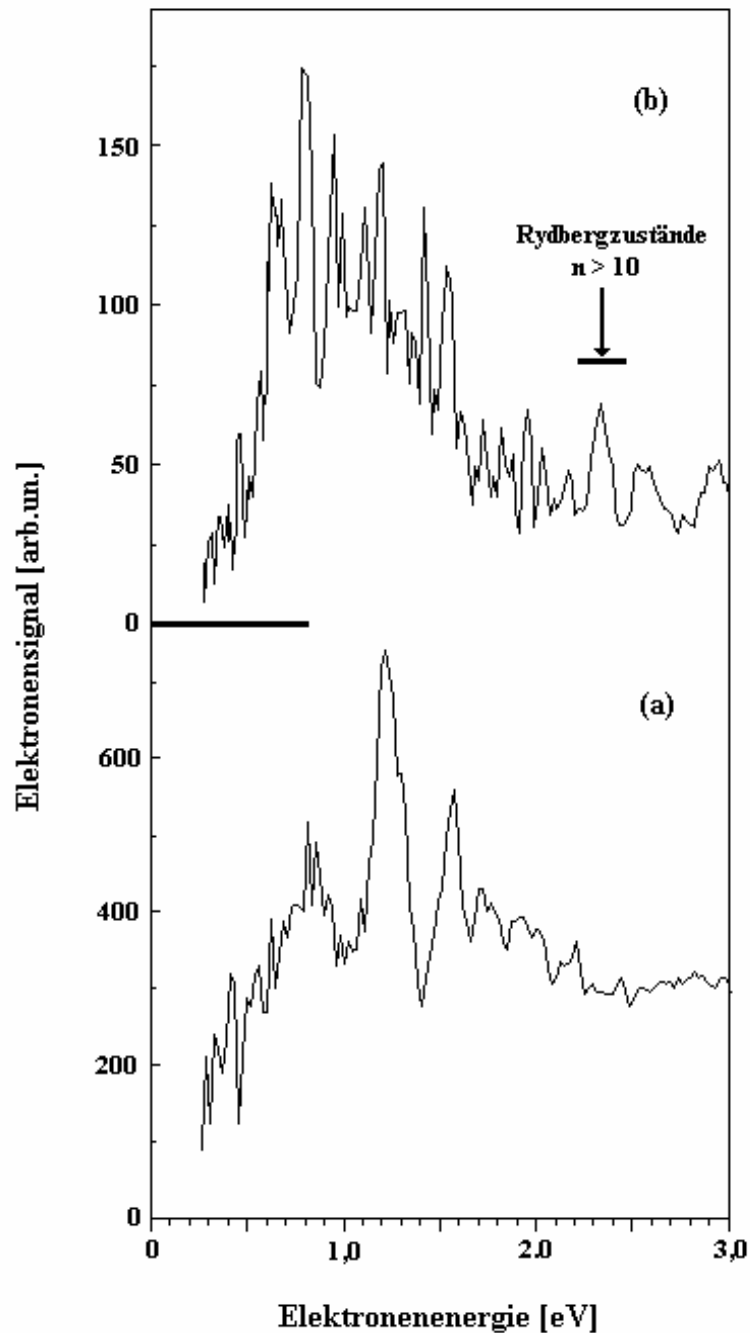


Bild 42.10 : zeigt unter ( a ) ein typisches MPI-Spektrum von atomarem Wasserstoff für 610 nm,  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> bei einer Pulslänge von 400 fs. Teilbild ( b ) ein Spektrum der Photoelektronen der ionisierten Rydbergatome, wobei ein Abzugsfeld mit +60 V die Photoelektronen des MPI-Prozesses absorbiert hat. Die Ionisation der Rydbergatome erfolgt mit einer Verzögerung von 30 ns mit einem Laserpuls mit 532 nm,  $1 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> bei einer Pulslänge von 5 ns. Der MPI-Prozeß ist mit einer um  $90^\circ$  gedrehten Polarisation gegenüber der Detektorachse angeregt worden.

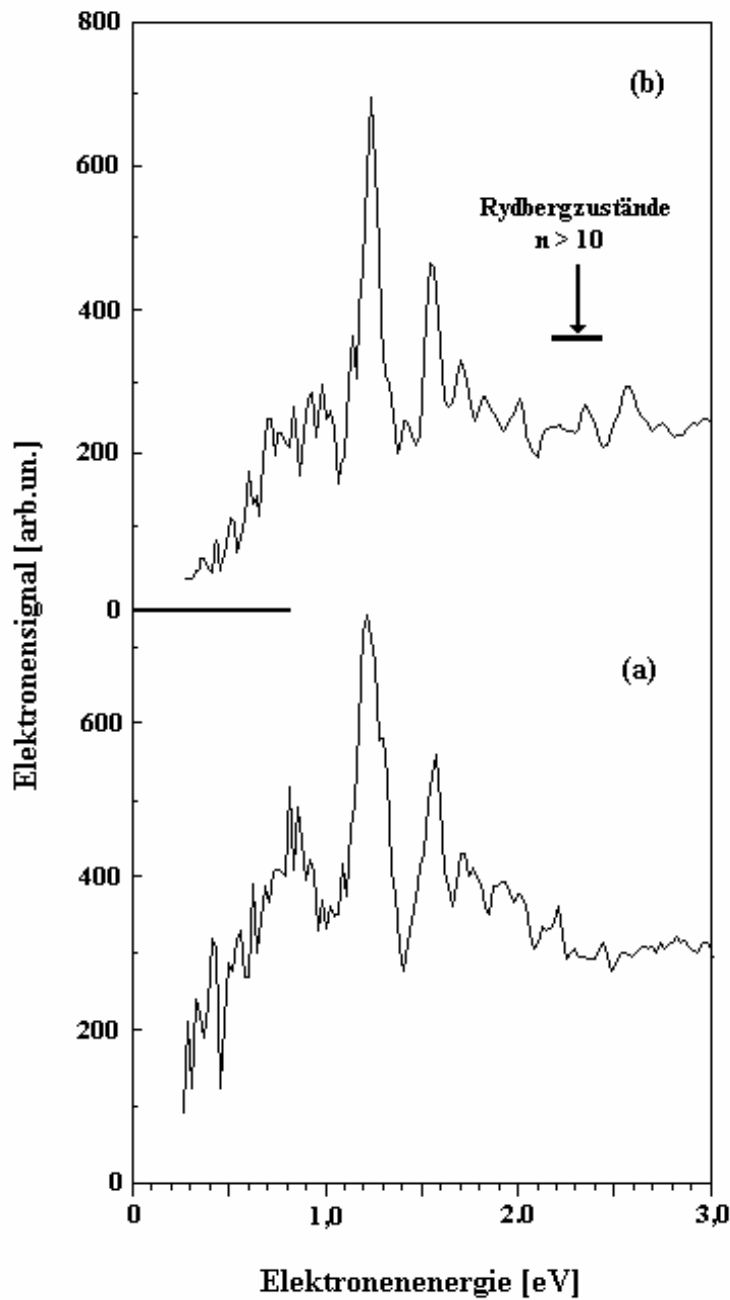


Bild 42.11 : zeigt unter ( a ) ein typisches MPI-Spektrum von atomarem Wasserstoff für 610 nm,  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> bei einer Pulslänge von 400 fs, unter ( b ) ein Spektrum der Photoelektronen der ionisierten Rydbergatome zusammen mit dem MPI-Signal.. Ein zusätzlichen Signal ist bei 2,3 eV erkennbar und kann als Ionisationssignal von Rydbergatomen mit  $n > 10$  identifiziert werden.

Ein zirkular polarisiertes Laserfeld, das in der folgenden Messung für den Multiphotonenprozeß genutzt wurde, initiiert ein völlig anderes Photoelektronenspektrum als in der linear polarisierten Meßsituation. Wieder ist, wie auch bei der Untersuchung von Xenon, die auf Resonanzen basierende Substruktur des Spektrum auf ein energetisch sehr breites Maximum der Photoelektronen je ATI-Gruppe reduziert, vgl. Bild 42.13.

Um diese Zusammenhänge für eine Ionisation graphisch darzustellen, vgl. Bild 42.12, wird der Beitrag der radialen Wellenfunktion des Grundzustandes nach Absorption von  $n$  – Photonen ( a ) der Wellenfunktion eines energetisch erreichbaren resonanten Zwischenzustandes ( b ) gegenübergestellt. Eine weitere Wellenfunktion, nämlich die des nach der Ionisation mit der resultierenden kinetischen Energie im Kontinuum befindlichen Elektrons ( c ) wird diesem Bild hinzugefügt mit dem Ziel, den Überlapp der Wellenfunktionen und damit die Wahrscheinlichkeit für den betrachteten Prozeß beurteilen zu können [MUL 93].

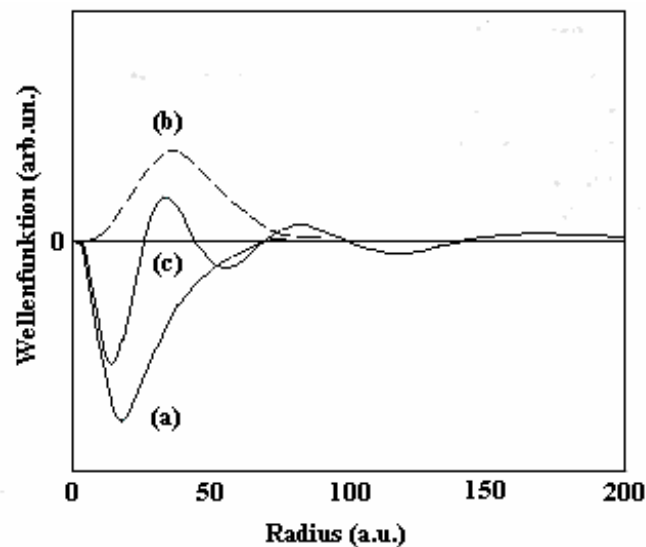


Bild 42.12 : zeigt ( a ) die Wellenfunktion der Grundzustandes nach Absorption von  $n$  – Photonen, ( b ) die Wellenfunktion der erreichbaren Resonanz und ( c ) die Wellenfunktion des Kontinuumzustandes des Elektron für die entsprechende kinetische Energie bzgl. des Zustandes beschrieben durch (a). Der wesentliche Aspekt dieser Darstellung ist der sichtbare Überlapp der Wellenfunktionen und damit die Wahrscheinlichkeit für den betrachteten Prozeß [MUL93]

In der durchgeführten Messung können, ausgehend vom Grundzustand des Wasserstoffatoms, bei einer Laserintensität von ca.  $1 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  und einer Starkverschiebung von maximal 3,1 eV die Zustände mit  $n = 8$  bzw.  $n = 9$  mit einem 7 - oder 8 -Photonenschritt erreicht werden. Dieser bevölkerte Zustand kann durch den anregenden Laserpuls nicht

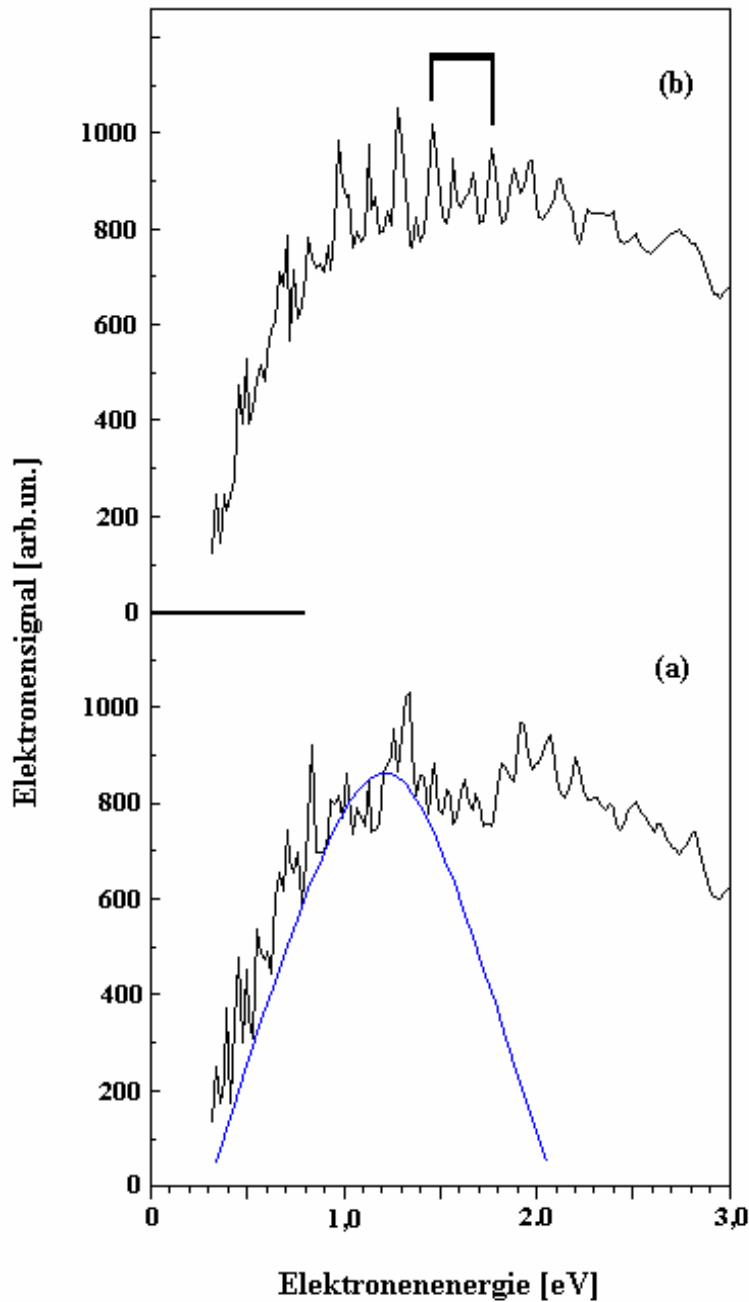


Bild 42.13 zeigt unter ( a ) ein Multiphotonenspektrum von atomarem Wasserstoff, das mit zirkularer Laserstrahlung von 610 nm, 400 fs Pulsdauer bei einer Leistung von ca.  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> aufgenommen wurde. Die blau gezeichnete Kurve deutet den prinzipiellen Kurvenverlauf der S0-ATI-Gruppe an. ( b ) zeigt dieses Spektrum mit einem zusätzlichen Laserpuls (Probelaser) mit 532 nm, 5 ns Pulsdauer und etwa  $1 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>, der mit einem Delay von 9 ns die verbleibenden Rydbergatome ionisiert und mit Pfeilen gekennzeichnete Signalmaxima der Ionisation überlebender Rydbergatome liefert.

ionisiert werden und folglich ist auch kein entsprechendes Elektronensignal im Bild 42.13a beobachtet worden. Zustände dieser Art - population traps - können ausschließlich von einem Photonenfeld mit hohem Photonenfluß ionisiert werden, sodaß nach dem Probelaserpuls ( 532 nm, 5 ns Pulsdauer und der Intensität von etwa  $1 \times 10^{11} \text{ W cm}^{-2}$ ) die Rydbergatome ionisieren und Photoelektronen mit entsprechenden kinetischen Energien detektiert werden können, vgl. Bild 42.13b. Es ist in einem Bereich des Elektronenspektrums zwischen 1,45 eV ( $\hat{=}$  1,15 eV ) und 1,75 eV ( $\hat{=}$  1,45 eV ) eine Signalzunahme gemessen worden, die nur in dem Spektrum mit Anregungs- und Probelaser zu sehen ist. Für eine Identifikation des oder der resonanten Zwischenzustände wäre eine signifikantere Struktur des Spektrums erforderlich.

Da auch am Wasserstoff ein „population trapping“ nachgewiesen werden konnte, können die Ergebnisse dieser Messungen für die in Kapitel 2.4 geführte Diskussion über die mögliche Ursache der Reihe von „Extra-Peaks“ im MPI-Spektrum genutzt werden. Ein weiteres Indiz für diese Modellvorstellung zu der bereits im Kapitel 4.1.3 vorgestellten Messung der Winkelverteilung der Photoelektronen der „Extra-Peak-Reihe“, ist der hier geführte Nachweis von Rydbergzuständen nach dem Multiphotonenprozeß, der sowohl für zirkulare als für lineare Polarisation gelungen ist. Im Grenzbereich der S0-ATI-Gruppe, d.h. für  $E \leq 2,035$  eV, ist für die lineare Laserpolarisation ein breites Elektronenmaximum zu sehen, das auf die Anregung mehrerer hoher Rydbergzustände zurückzuführen ist. Es kann daher nicht ausgeschlossen werden, das die Wellenfunktionen der Zustände miteinander interferieren und es zu der Ausbildung des erwähnten radialen Wellenpaketes mit definierter Umlauffrequenz kommt.

### 4.3 Phasenabhängige Bicolor-Multiphotonenionisation

Die Untersuchung von ATI-Prozessen unter gleichzeitiger Verwendung zweier intensiver Laserfelder unterschiedlicher Wellenlänge, die ganzzahlige Vielfache voneinander sind, kann durch die kontrollierte Veränderung der Phasenbeziehung zwischen beiden Strahlungen dazu genutzt werden, den Ionisationsprozeß aktiv zu beeinflussen und daher den Ionisationsvorgang genauer analysieren zu können. Die experimentellen Ergebnisse von D.W. Schumacher und P.H. Bucksbaum [BUC96] lassen die Interpretation zu, daß diese Untersuchung in einem Grenzbereich zwischen MPI - und Tunnelionisation stattfindet, wobei die Identifikation anhand des dimensionslosen Keldysh-Parameters  $\gamma$  geschieht. Dieser Keldysh-Parameter ist ein Maß für einen Zeitraum in Einheiten von optischen Perioden, den ein Elektron benötigt, um durch die Atom-Laser-Potentialbarriere zu gelangen :

$$g = \sqrt{I_p / 2U_p} = \sqrt{2I_p w^2 / F^2} \quad (43-1)$$

$I_p$  : Ionisationspotential,  $U_p$  : ponderomotives Potential,  $F$  : Feldstärke

wobei in dem Bereich  $g \ll 1$  die Tunnelionisation und für  $g \gg 1$  die MPI dominiert. Charakteristisch für die Tunnelionisation ist die exponentielle Abhängigkeit der Ionisationsrate vom Laserfeld : die größte Ionisationswahrscheinlichkeit wird während des Maximums der Feldstärke erwartet. In einem Zweifarbenfeld kann mit einer Phasenveränderung zwischen beiden Lichtwellen diese Maximalamplitude des Feldes variiert und der Zusammenhang mit der Signalstärke beobachtet werden.

P.H. Bucksbaum, D.W. Schumacher und H.G. Muller et al. [LIN 88] [MUL 90] versuchten eine Beschreibung des Zweifarben-Experiments mit der semiklassischen „Simplemans Theory“, die auf dem „Zwei-Stufen-Modell“ von P.B. Corkum et al. [COR 89] basiert. Das elektrische Zweifarben-Laserfeld hat die Form :

$$F(t) = F_1 \cos(\omega t) + F_2 \cos(2\omega t + \phi) \quad (43-2)$$

wobei das Feld  $F_2$  das Feld der zweiten Harmonischen von  $F_1$  mit einer Phasendifferenz von  $\phi$  zur Zeit  $t = 0$  ist.

Für den Fall, daß die Frequenz des Feldes  $\omega$  „langsam“ genug im Vergleich mit der zeitlichen Entwicklung der Ionisationsrate  $\Gamma(t)$  ist, kann die Ionisation als Tunnelprozeß behandelt werden. Diese Rate ist exponentiell von der Feldamplitude abhängig [COR 89]:

$$\Gamma(t) = 4I_p^{5/2} \frac{1}{F(t)} \exp\left[ -\frac{2}{3} I_p^{3/2} \frac{1}{F(t)} \right] \quad (43-3)$$

In dem zweiten Schritt dieses Modells wird davon ausgegangen, daß das Elektron nach der Ionisation als klassisches Teilchen ohne Anfangsgeschwindigkeit oder mit einer isotropen Geschwindigkeitsverteilung  $\sqrt{2E_0}$  diesem Zweifarbenfeld ausgesetzt wird und am Ende des Laserpulses über die in Gleichung 43-4 beschriebene kinetische Energie verfügt ( gemittelt über einen optischen Zyklus ) :

$$(43-4)$$

$$E_{kin} = U_{p1} + 2U_{p1} \sin^2 \omega t_0 + U_{p2} + 2U_{p2} \sin^2 (2\omega t_0 + \mathbf{f}) + 4(U_{p1}U_{p2})^{1/2} \sin \omega t_0 \sin (2\omega t_0 + \mathbf{f})$$

mit dem ponderomotiven Potential des  $i$ -ten Feldes :

$$U_{pi} = \frac{e^2 F^2}{4m_e \omega^2} \quad (43-5)$$

Die kinetische Elektronenenergie  $E_{kin}$  setzt sich demnach aus zwei Komponenten zusammen, dem ponderomotiven Potential ( Quiver-Energie )  $U_{p1} + U_{p2}$  und der Driftenergie, die von der Phase des Feldes im Moment der Ionisation abhängig ist. Im Fall ultrakurzer Pulse geht die ponderomotive Energie wieder an das Feld zurück während es für den Beitrag der Driftenergie keine Einschränkungen gibt.

Eine explizite Rechnung für eine phasenabhängige Ionisation von atomarem Wasserstoff in einem Zweifarbenlaserfeld haben K.J. Schafer und K.C. Kulander et al. [KUL 92], angeregt durch die Messungen von H.G. Muller et al. [MUL 90], mit dem anschließend beschriebenen

Ergebnis durchgeführt. Da in diesen Messungen Intensitäten  $\geq 1 \times 10^{13} \text{Wcm}^{-2}$  verwendet wurden, war eine nichtstörungstheoretische Berechnung notwendig. Die Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung, ausgehend vom Wasserstoff - Grundzustand ( $1s$ ), wurde für Laserpulse mit zeitlich trapezförmigem Verlauf und Frequenzen der Fundamentalen und 2. Harmonischen gerechnet.

Die Ergebnisse für Wellenlängen von  $\lambda = 532 \text{ nm}$  und  $\lambda = 660 \text{ nm}$  mit jeweils der zweiten Harmonischen und Intensitäten von  $1 \times 10^{13} \text{Wcm}^{-2}$  sind in den Bildern 43.1 und 43.2 dargestellt.

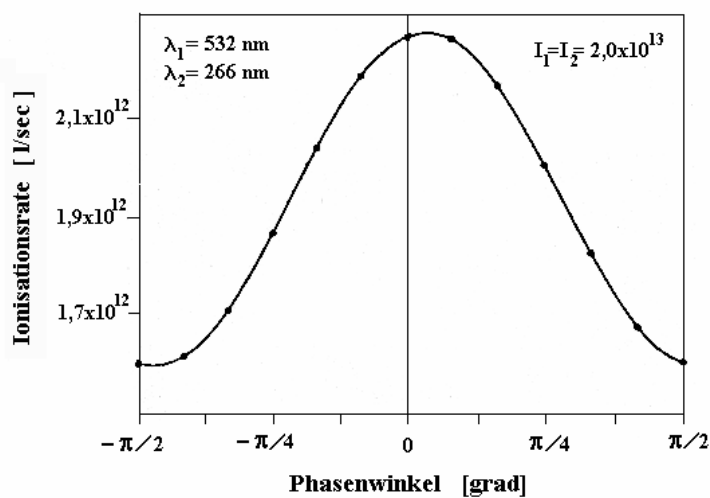


Bild 43.1 zeigt die totale Ionisationsrate von atomarem Wasserstoff als Funktion der Phasenverschiebung der Fundamentalen mit  $\lambda = 532 \text{ nm}$  gegen die Phase der 2. Harmonischen mit  $\lambda = 266 \text{ nm}$  bei einer identischen Intensität  $I_1 = I_2 = 2 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$  [KUL92].

Deutlich zu sehen ist die starke Abhängigkeit der totalen Ionisationsrate von der Phasenbeziehung zwischen der Fundamentalen und 2. Harmonischen, wobei besonders auffällig ist, daß keine Symmetrie bezüglich  $\phi = 0^\circ$  vorliegt. Für die Interpretation der Ionisation kann letztlich nur von einer Interferenz verschiedener Ionisationskanäle ausgegangen werden, da eine einfache Abhängigkeit vom Maximum des Feldes nicht zu beobachten ist. Diese Kopplungen zwischen den beiden Feldern, bzw. zwischen den Volkov-Endzuständen führen dazu, daß sowohl eine gerade wie auch eine ungerade Anzahl von Photonenabsorptionen zu der gleichen kinetischen Energie im Elektronenspektrum kann. Diese Endzustände haben nun nicht mehr den Status des Eigenzustandes der Parität [PAN 89].

Die für eine Tunnelionisation typische Phasenabhängigkeit, die die höchste Ionisationsrate im Maximum des Feldes verlangt, kann bei den Wellenlängen von  $\lambda = 532 \text{ nm}$  bzw.  $\lambda = 660 \text{ nm}$  erst für höhere Intensitäten  $\geq 3 \times 10^{13} \text{Wcm}^{-2}$  beobachtet werden. Charakteristisch für diesen Bereich ist ein symmetrisches Signalverhalten für  $\phi = 0^\circ$  bzw.  $\phi = 90^\circ$ .



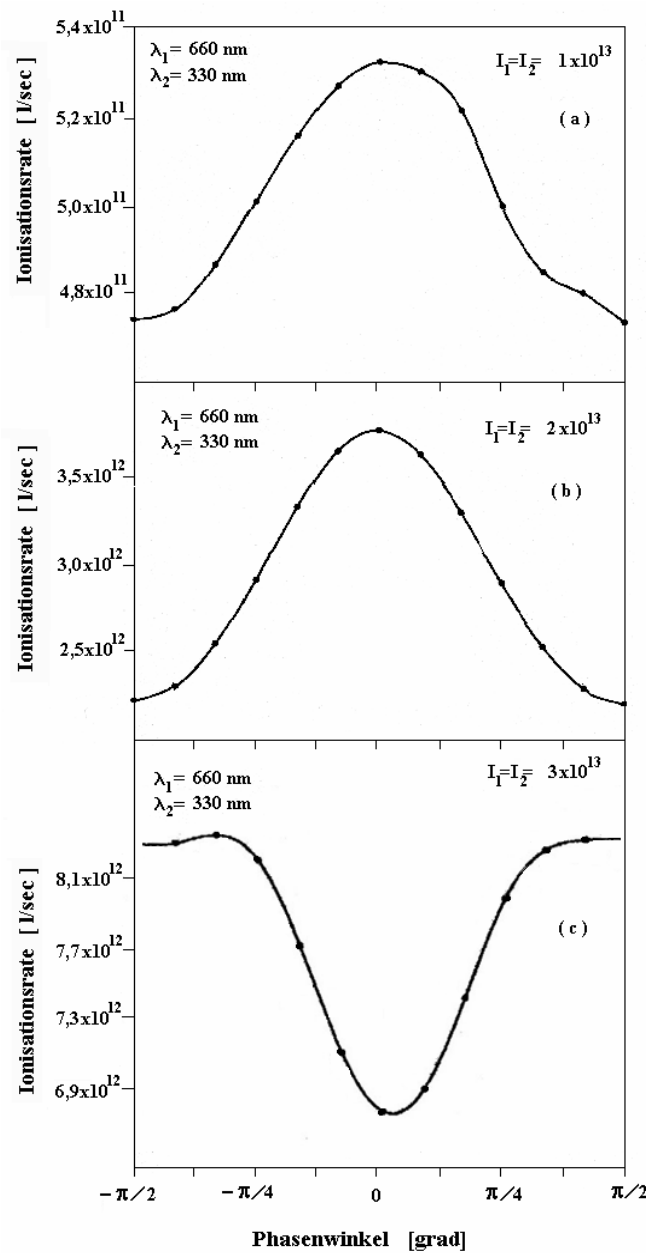


Bild 43.2 zeigt die totale Ionisationsrate von atomarem Wasserstoff als Funktion der Phase der Fundamentalen  $\lambda = 660 \text{ nm}$  zur 2. Harmonischen bei gleichen Intensitäten von  $I_1 = I_2 = 1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  im Teilbild (a) und  $2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  in (b) und  $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  in (c) [KUL92].

Das als Tunnelionisation beschriebene Verhalten der Multiphotonenionisation in einem Zweifarbenlaserfeld ist in einer Untersuchung von D.S. Guo et al. [GUO 98] erneut diskutiert worden, wobei als Ausgangspunkt die nichtstörungstheoretische Streutheorie von Guo, Aberg

und Craseman ( GAC ) gewählt wurde. Der erste Schritt dieser im wesentlichen auf der zeitunabhängigen KFR-Theorie basierenden Überlegung beschreibt den Prozeß der Ionisation des Elektrons in ein Strahlungsfeld und die Zuordnung eines Volkov-Zustandes. Im „zweiten“ Schritt dieses Modells reagiert das Elektron auf die Beendigung des Laserpulses mit dem Verlassen des Volkov-Zustandes als freies Teilchen. Das Resümee dieser Rechnungen ist im wesentlichen eine Bestätigung der Messungen und Simulationen von D.W. Schumacher et al. allerdings mit dem Hinweis, daß zwar die klassische Betrachtung der Phasendifferenz beider Strahlungen für die Wechselwirkung mit dem Atom richtig ist, aber das freie Photoelektron mit einer quantenmechanische Phasendifferenz beschrieben werden muß und als meßbarer Effekt einer Quanteninterferenz aufgefaßt werden kann.

Ein zu K.J. Schafer und K.C. Kulander vergleichbarer theoretischer Ansatz zur Lösung der dreidimensionalen zeitabhängigen Schrödingergleichung für eine Multiphotonenionisation in einem Zweifarbenlaserfeld ist in der Gruppe von F.H.M. Faisal von M. Nurhuda und U. Lambrecht entwickelt worden. Die Ergebnisse sind hier explizit für die Bedingungen in dem durchgeführten Experiment für die Wellenlängen  $\lambda = 610$  nm und  $\lambda = 305$  nm bei einer Intensität von  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> für atomaren Wasserstoff und Xenon berechnet worden und zeigen sowohl für das phasenwinkelabhängige Signal der Photoelektronen unter festem Winkel zur Polarisationsrichtung als auch für das phasenwinkelabhängige Ionensignal gute Übereinstimmung. Diese theoretischen Kurven sind als Referenz den experimentellen Ergebnissen in der folgenden Diskussion ( Kap. 4.3.3, Kap. 4.3.4 und Kap. 4.3.5 ) gegenübergestellt worden.

### 4.3.1 Experimenteller Aufbau

Das in Kapitel 3.2 beschriebene Lasersystem ist auch hier die Basis für eine in diesem Aufbau erforderliche apparative Erweiterung. Die Laserstrahlung mit der Wellenlänge von 610 nm, der Energie von ca. 2,5 mJ, der Pulsdauer von etwa 400 fs und einem Strahldurchmesser von 17 mm wird mittels einer plankonvexen Linse ( $f = 600$  mm) in einen BBO-Kristall für die Frequenzverdopplung fokussiert. Es werden etwa 70% der Laserleistung für diese Konversion durch einen Strahlteiler zur Verfügung gestellt, wobei die restlichen 30% der Strahlung auf eine 1 mm starke Quarzglasplatte treffen, die durch Drehung den Lichtweg im dichteren Medium variieren und damit die Phase gegenüber der frequenzverdoppelten Strahlung verändern kann. Resultierend aus dem für die Phasenverzögerung ausreichende Drehwinkel von etwa  $8^\circ$  ist der entstehende Strahlversatz vernachlässigbar. Der Reflex dieser Quarzglasplatte wird für die genaue Ermittlung des Drehwinkels

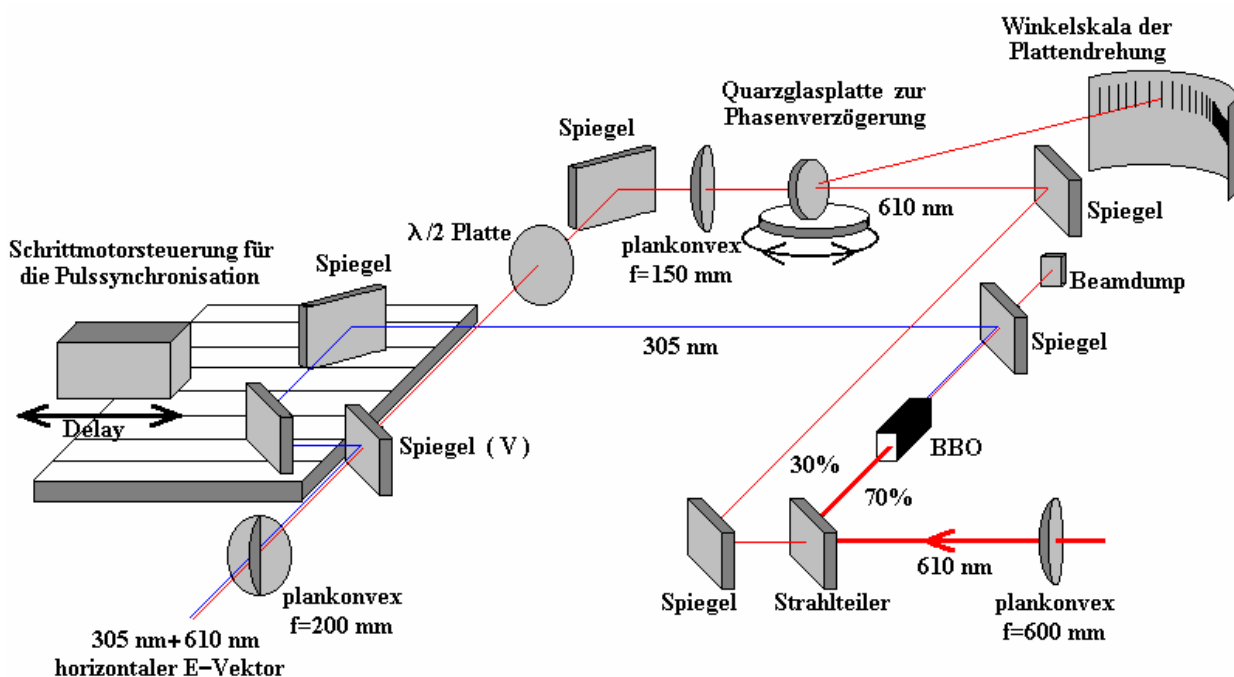


Bild 431.1 zeigt den experimentellen Aufbau für die Zweifarben-MPI-Messung mit den Wellenlängen 610 nm und 305 nm. Zentrales Element dieses Aufbaus ist die Quarzglasplatte, die durch kontrolliertes Verdrehen einen verzögerten Lichtweg der 610 nm Strahlung gegen den Laserpuls mit 305 nm verursacht.

auf eine geeichte und in einem Radius verlaufende Skala in etwa 2 m Entfernung genutzt. Die Strahlung mit  $\lambda = 610 \text{ nm}$  passiert für eine horizontale Ausrichtung des elektrischen Feldvektors eine  $\lambda/2$  Verzögerungsplatte, bevor sie in dem Spiegel ( V ) mit der ultravioletten Strahlung vereinigt wird. Beide Pulse passieren nun ineinander verlaufend eine plankonvexe Linse (  $f = 200 \text{ mm}$  ), mit der ein paralleler Strahlungsverlauf für beide Wellenlängen eingestellt werden kann, vgl. Bild 431.1.

Um die Gleichzeitigkeit beider Laserpulse (  $\lambda = 610 \text{ nm}$  und  $\lambda = 305 \text{ nm}$  ) in der Wechselwirkungszone sicherzustellen, befindet sich vor der Vakuumkammer ein Aufbau, mit dem die Synchronisation beider Pulse analysiert werden kann. Hierzu wird ein Spiegel  $S_t$  in den Strahlengang gebracht, der die Laserstrahlung rechtwinklig in eine Linse mit einer Brennweite von  $f = 100 \text{ mm}$  umlenkt, die in einen BBO-Kristall fokussiert ( eine identische Linse wird für die Fokussierung in den Wechselwirkungsbereich benutzt ). Die Lichtwege sind vom Spiegel  $S_t$  aus so bemessen, daß der Abstand zum Fokus im Wechselwirkungsvolumen dem Abstand zum Bereich der Frequenzmischung im BBO-Kristall entspricht. Sind nun beide Pulse gleichzeitig in dem Mischkristall, kann eine Summenfrequenz (  $\lambda = 203 \text{ nm}$  ) gebildet werden, die durch einen Reflexionsfilter selektiert als Fluoreszenz auf dem nachfolgenden Schirm sichtbar wird, vgl. Bild 431.2.

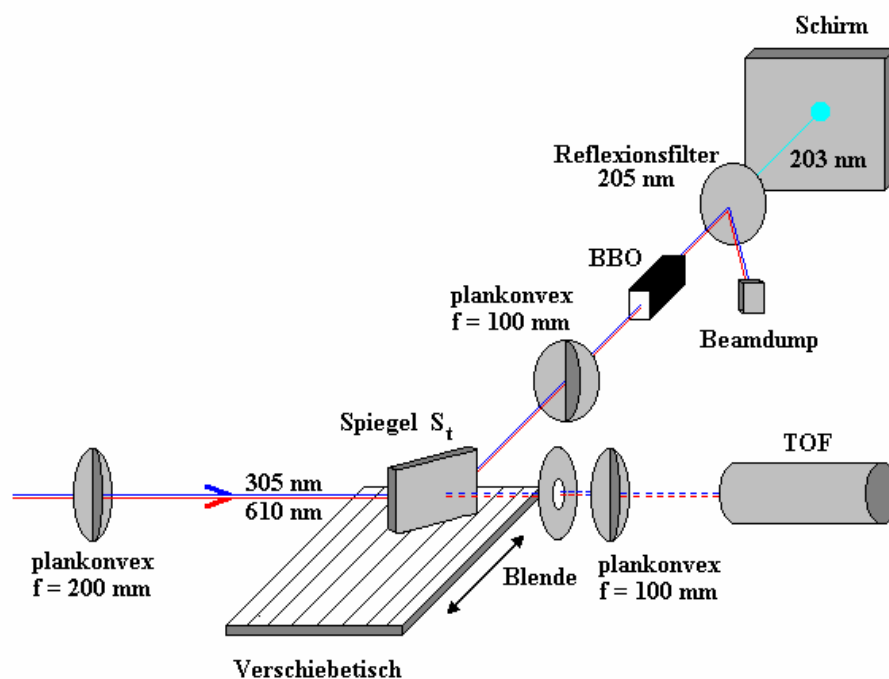


Bild 431.2 zeigt den Aufbau für die Messung der Gleichzeitigkeit beider Laserstrahlen (  $610 \text{ nm}$  und  $305 \text{ nm}$  ) im Wechselwirkungsvolumen. Im Fall der Gleichzeitigkeit wird ein Summenfrequenzsignal mit der Wellenlänge von  $203 \text{ nm}$  als Fluoreszenz auf dem Schirm sichtbar.

Die Einstellung der Gleichzeitigkeit beider Strahlungen erfolgt über eine Delaystrecke, vgl. Bild 431.1, wobei bei optimalem zeitlichen Überlapp die höchste Intensität des Summenfrequenzsignals erzielt wird.

Die Vakuumapparatur wird für die Messungen mit einem Druck von etwa  $3 \times 10^{-6} \text{ mbar}$  mit Xenon gefüllt. Wie schon in Kapitel 3.1 beschrieben ist der Druck für die Messung an atomarem Wasserstoff an den Arbeitsbereich der Mikrowellenentladung gebunden und entspricht einem Kammerdruck von ca.  $6 \times 10^{-6} \text{ mbar}$  mit einer Teilchendichte im Austrittsbereich der Kapillare von etwa  $3 \times 10^{10}$  Teilchen pro  $\text{cm}^3$ .

Als Folge der Erzeugung der 2ten Harmonischen entstehen unterschiedliche Strahldurchmesser, 12 mm Durchmesser für  $\lambda = 305 \text{ nm}$  und 8 mm für  $\lambda = 610 \text{ nm}$ . Dadurch ergeben sich für die Fokussierung unterschiedliche Bedingungen, die mit der Gleichung ( 431-1 ) [BOR88] beschrieben werden können:

$$R_0 \approx \frac{f l}{p R_s} \quad (431-1)$$

Der kollimierte Laserstrahl mit Gaußprofil mit einem Radius von  $R_s$  kann mit einer Linse mit der Brennweite  $f$  auf die minimale Fleckgröße  $R_0$  transformiert werden, wobei die resultierenden Werte für das Beugungslimit gelten.  $R_0$  und  $R_s$  stehen für den 1/e- Radius des Feldes. Eine real durchgeführte Fokussierung kann, selbst für achromatische Linsensysteme,

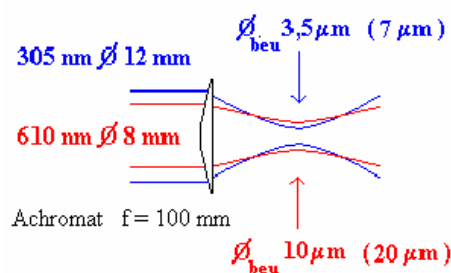


Bild 431.3 zeigt die Fokussierung der beiden Laserstrahlen mit den Wellenlängen  $610 \text{ nm}$  und  $305 \text{ nm}$  mit unterschiedlichem Durchmesser. Der Index „beu“ bezeichnet die jeweilige theoretische Minimalfleckgröße im Beugungslimit für eine Transformation durch einen Achromaten mit  $f = 100 \text{ mm}$ . Die geklammerten Werte sind Korrekturen, die als Folge von Abbildungsfehlern der Linse erforderlich sind.

diese theoretischen Vorgaben als Folge von Abbildungsfehlern nicht erreichen. Es ist daher neben der Korrektur der Fleckgröße um den Faktor 2 eine entsprechend neue Abschätzung der Spitzenintensität erforderlich [PAU96], vgl. Bild 431.3

Die Definition der Phasenlage entspricht in diesem Experiment und in den Modellrechnungen, die den experimentellen Daten gegenübergestellt werden [LAM 96], der in Bild 431.4 dargestellten Situation :

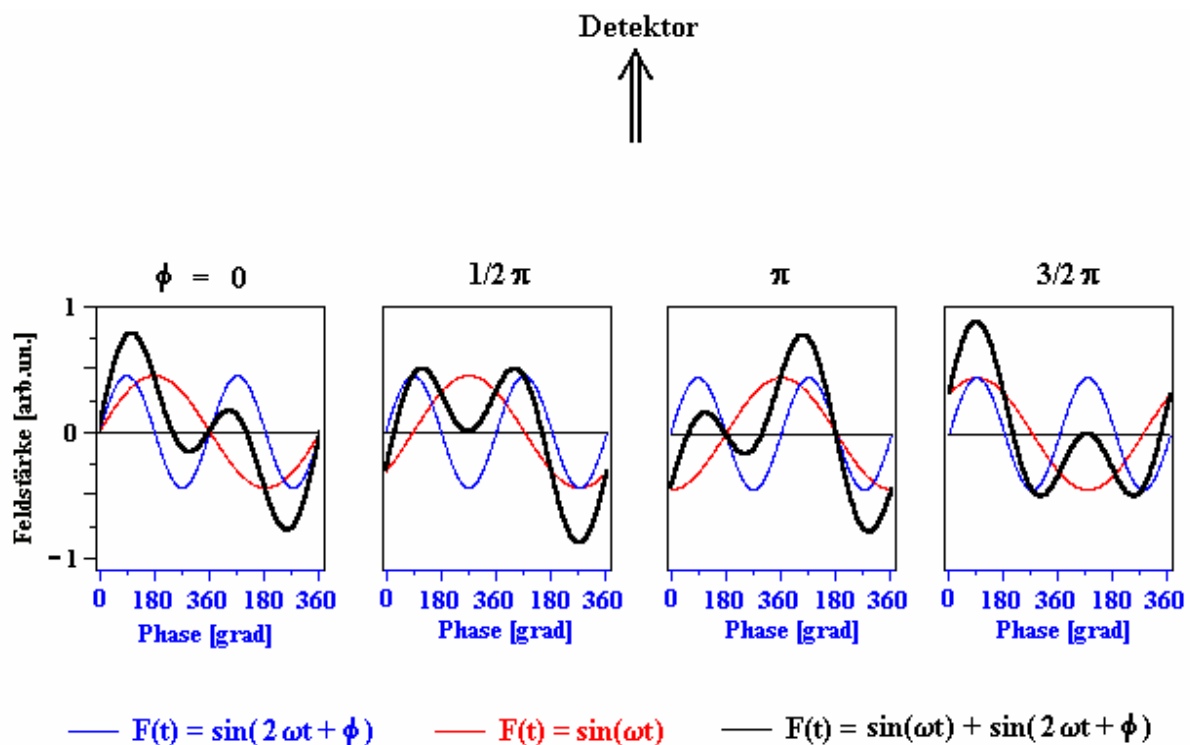


Bild 431.4 zeigt die in diesem Experiment definierte Phasenlage der Lasersstrahlung mit 610 nm ( rot ) zur Phase der Strahlung mit 305 nm ( blau ). Mit identischen Amplituden der beiden Felder kommt es bei der dargestellten Phasenverschiebung zu der berechneten Superposition ( schwarz ).

Testmessungen an atomarem Wasserstoff führen zu den abgebildeten Photoelektronenspektren, Bild 431.5, die die Signalintensität des MPI-Prozesses für  $\lambda = 610$  nm (a),  $\lambda = 305$  nm (b) und für  $\lambda = 305$  nm +  $\lambda = 610$  nm (c) zeigen. Deutlich ist erkennbar, daß für  $\lambda = 610$  nm lediglich der Nachweis einiger Ereignisse gelingt, während für den MPI-Prozeß mit  $\lambda = 305$  nm bereits ein signifikantes Elektronenmaximum detektiert wurde. Für die Messung

der Bicolor-Multiphotonenionisation ist eine im Vergleich auffallend hohe Änderung der Signalintensität zu beobachten.

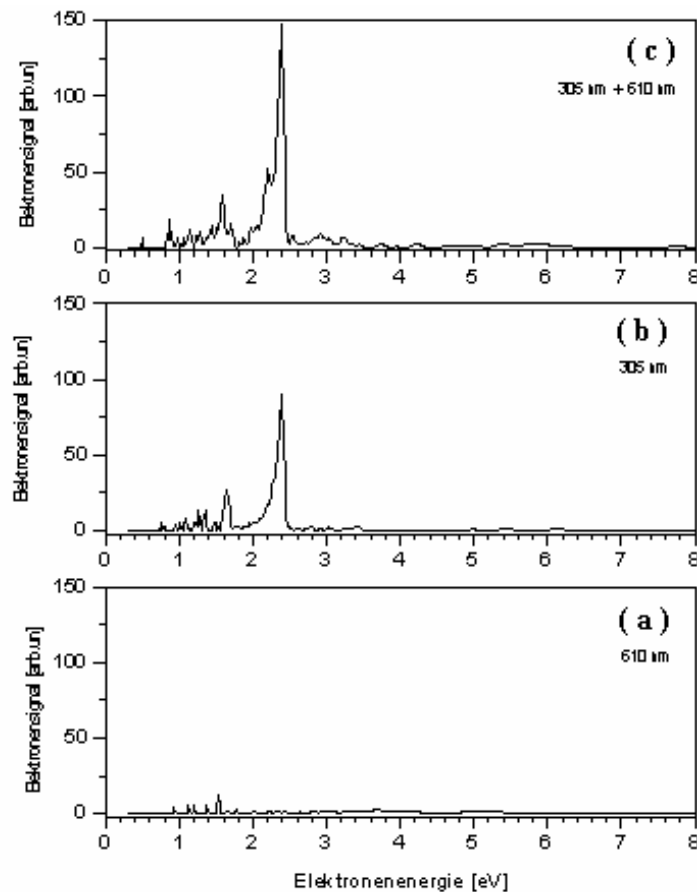


Bild 431.5 zeigt Photoelektronenspektren für atomarem Wasserstoff für einen Laserpuls mit ( a ) 610 nm, 400 fs, ca.  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> ( b ) 305 nm, 280 fs, ca.  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> und ( c ) 610 nm + 305 nm mit einer Phasendifferenz der Fundamentalen gegen die 2. Harmonische von  $\phi = 180^\circ$ .

In einer weiteren Messung wurde der Nachweis von Wasserstoffionen durchgeführt, da in dieser Meßanordnung alle erzeugten Ionen, d.h. das totale Ionisationssignal detektiert werden kann, vgl. Bild 431.5 :

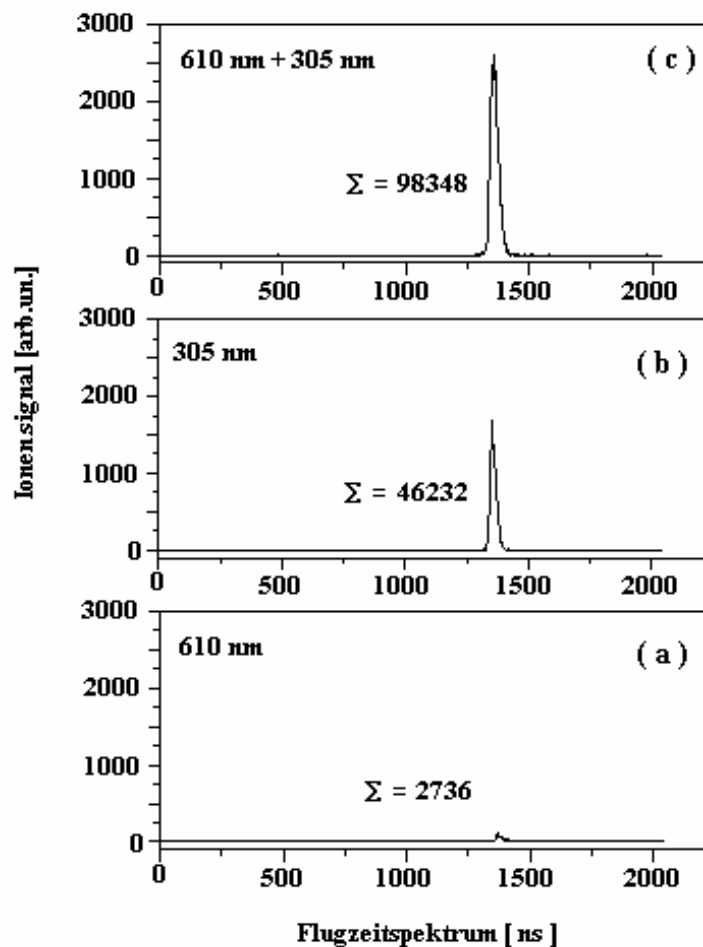


Bild 431.6 zeigt Ionenflugzeitspektren von atomarem Wasserstoff für die Wellenlängen ( a ) 610 nm mit einer Intensität von etwa  $3 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> und ( b ) 305 nm mit der Intensität von ca.  $2 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. Teilbild ( c ) zeigt das Spektrum, das mit beiden Wellenlängen und der Phasendifferenz zwischen der Fundamentalen und 2. Harmonischen von  $\phi = 270^\circ$  aufgenommen wurde. Die Werte der Signalintegration sind für jede Kurve als Summe deklariert

Deutlich ist ein analoges Verhalten zum Nachweis der Photoelektronen sichtbar, wobei ein minimales Ionensignal für den MPI-Prozess mit  $\lambda = 610$  nm (a) und eine höhere Anzahl von Ereignissen für die Ionisation mit  $\lambda = 305$  nm (b) zu beobachten ist. Ein signifikantes, um den Faktor zwei erhöhtes Ionensignal kann für den Bicolor-Ionisationsprozess ( c ) nachgewiesen werden.



### 4.3.2 Bestimmung des absoluten Phasenwinkels

Der absolute Phasenwinkel der Strahlungen des Bicolorlaserpulses im Fokusbereich wird durch ein Interferenzsignal bestimmt, das von dem Laserpuls mit  $\lambda_2 = 305 \text{ nm}$  und von dem frequenzverdoppelten Puls mit  $\lambda_1 = 610 \text{ nm}$  erzeugt wird.

Der experimentelle Aufbau für die Bestimmung des absoluten Phasenwinkels zweier Laserpulse zueinander ist in Bild 432.1 dargestellt. Beide Wellenlängen,  $\lambda_1 = 610 \text{ nm}$  und  $\lambda_2 = 305 \text{ nm}$ , passieren fokussiert den Wechselwirkungsbereich mit gleicher Polarisation und werden anschließend mit einem parabolischen Spiegel um  $45^\circ$  reflektiert und in einen BBO (Beta Barium Borat) – Kristall Typ I fokussiert. Nach einem Absorptionsfilter für  $\lambda_1 = 610 \text{ nm}$  wird mit einer schnellen Photodiode das Interferenzsignal der beiden Laserpulse mit  $\lambda_1 = \lambda_3 = 305 \text{ nm}$  detektiert.

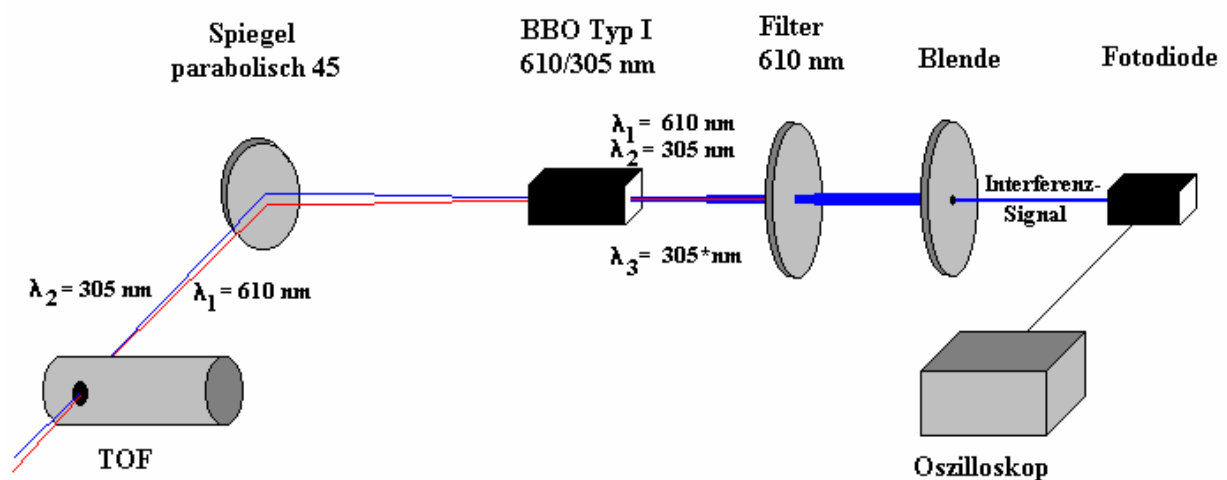


Bild 432.1 : zeigt den Aufbau zur Bestimmung des absoluten Phasenwinkels zwischen der Strahlung mit  $\lambda_1 = 610 \text{ nm}$  und  $\lambda_2 = 305 \text{ nm}$ . Ein parabolischer  $45^\circ$  Spiegel fokussiert beide Strahlungen in einen BBO Typ I Kristall, der die zweite Harmonische für  $\lambda_1 = 610 \text{ nm}$  erzeugt. Das detektierte Interferenzsignal der beiden Strahlungen mit  $\lambda_2 = \lambda_3 = 305 \text{ nm}$  dokumentiert die Phasenlage beider Laserpulse zueinander.

Eine Messung der Intensität des Interferenzsignals, vgl. Bild 432.1, wurde mit einer schnellen Photodiode durchgeführt und als Funktion der Phase im Bild 432.2 dargestellt.

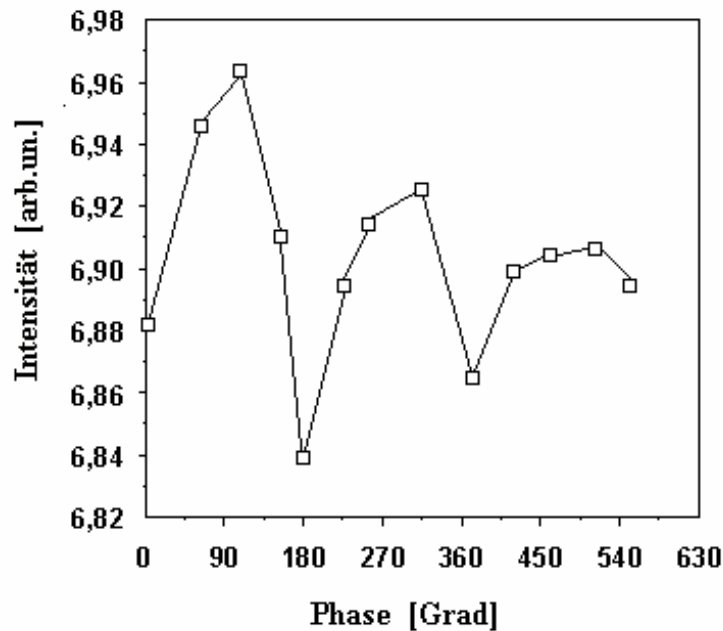


Bild 432.2 : zeigt das gemessene Intensitätssignal der Photodiode in Abhängigkeit der eingestellten Phasenlage der Strahlung mit  $\lambda = 610$  nm bezüglich der mit  $\lambda = 305$  nm.

Anmerkungen zur Änderung der relativen Phase im gemeinsamen Fokus des Bicolor-Laserpulses :

Im folgenden wird die Entwicklung der Phase eines Laserstrahls für eine Wellenlänge und  $TEM_{00}$ -Mode diskutiert [BUC 96], wobei die transversalen Moden mit der Gleichung 432-1 [YAR 89] beschrieben werden können :

$$F(r, z) = F_0 \frac{w(0)}{w(z)} \exp \left[ -i \left( kz - \tan^{-1} \left( \frac{z}{z_0} \right) \right) - r^2 \left( \frac{1}{w^2(z)} + \frac{ik}{2} \left[ z \left( 1 + z_0^2 / z^2 \right) \right]^{-1} \right) \right] \quad (432-1)$$

$z$ : Propagationsrichtung,  $F_0$ : max. Feld,  $w(z)$ : 1/e der Fokusgröße bei  $z$ ,  $z_0$ : konfokaler Parameter,  $\omega_0 = \omega(0)$ ,  $r$  und  $z$  in zylindrischen Koordinaten

Da die räumliche Veränderung der Phase im Fokus untersucht werden soll, kann das Feld auch in folgender Form beschrieben werden :

$$F(r, z) = F_{mag}(r, z)e^{i\Phi(r, z)} \quad (432-2)$$

mit der optischen Phase  $\Phi(r, z)$  :

$$\Phi(r, z) = -kz + \tan^{-1}(z/z_0) - \frac{r^2 k}{2} \frac{1}{z(1 + z_0^2/z^2)} \quad (432-3)$$

Für ein Zweifarbenlaserfeld, im Experiment die Fundamentale und die 2. Harmonische, sind viele unterschiedliche Phasen zu finden, für die die grundsätzliche Phasenbedingung 435-4 in einem kleinen Fokusbereich erfüllt sein sollte:

$$\nabla\Phi_2 = 2\nabla\Phi_1 \quad (432-4)$$

Ausgehend von der Nichtlinearität des Prozesses kann angenommen werden, daß das signifikante MPI-Signal nur innerhalb eines zentralen Bereichs der Strahltaile, also einem Bereich größter Intensität erzeugt wird. Mit der Näherung  $|z| \ll z_0$  kann die Gleichung 432-3 linearisiert werden:

$$\Phi(r, z) = -kz + \frac{z}{z_0} - \frac{1}{2} r^2 k \frac{z}{z_0^2} + \mathcal{O}\left(\frac{z^3}{z_0^3}\right) \quad (432-5)$$

Zusammen mit der Beziehung der konfokalen Parametern beider Farben  $z_{0,1}$  und  $z_{0,2}$  :

$$z_{0,2} = \frac{1}{2} z_{0,1} \quad (432-6)$$

wird die Forderung 432-4 durch Gleichung 432.5 bis zur 3ten Ordnung für  $z/z_0$  im Fokusbereich erfüllt.

Aufgrund dieser Ausführungen ist eine Veränderung der eingestellten Phase beider Strahlungen zueinander im Fokus vernachlässigbar, da von der Annahme ausgegangen werden kann, daß der wesentliche Anteil des MPI-Signal aus einem sehr kleinen Fokusbereich ( einige  $\mu\text{m}^3$  ) resultiert.

Dieses Interferenzsignal kann nicht direkt als Phasenbeziehung der Strahlungen im Wechselwirkungsvolumen interpretiert werden. Für die Bestimmung der Phase im Laserfokus muß die Phasenverschiebung im zweiten Verdopplerkristall, BBO Typ I, ( vgl. Bild 432.1 ) berücksichtigt werden mit dem Ergebnis, daß der Phasenwert des vom Diodendetektor gemessenen Interferenzsignals um  $-90^\circ$  bzw. um  $+90^\circ$  korrigiert werden muß. Für die Phasenbeziehung der beiden Laserpulse im Fokus ergeben sich so für das Interferenzsignal bei  $180^\circ$  die im Bild 432.3 dargestellten Möglichkeiten.

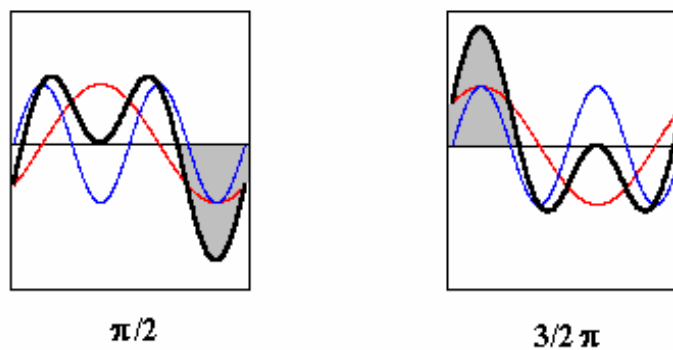


Bild 432.3 : zeigt die mit  $\Phi = \pi/2$  und  $\Phi = 3\pi/2$  bezeichnete Phasenwinkel beider Strahlungen (schwarz) : Die rote Kurve zeigt den Laserpuls mit  $\lambda = 610 \text{ nm}$ , der blaue mit  $\lambda = 305 \text{ nm}$  .

Diese Messungen sind simultan zur phasenabhängigen Zweifarbenmultiphotonenionisation von Xenon vorgenommen worden. Wird nun der Phasenwinkel des Interferenzsignals bei  $180^\circ$  als Phasenwinkel  $\pi/2$  des Zweifarbenfeldes im Bild 432.3 interpretiert, so können aufgrund der Entwicklung des Photoelektronensignals die relativen Phasen als absolute Phasen identifiziert werden.

### 4.3.3 Das phasenabhängige Bicolor-Elektronenspektrum von atomarem Wasserstoff

Im folgenden werden die erstmals gelungenen Messungen einer phasenabhängigen Zweifarbenmultiphotonenionisation von atomarem Wasserstoff diskutiert, die mit den Laserwellenlängen  $\lambda = 610$  nm und  $\lambda = 305$  nm und den Pulsdauern von 400 fs bzw. 280 fs mit vergleichbarer Intensität von ca.  $1 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$  durchgeführt wurden. Im Bild 433.1 ist das Photoelektronensignal für eine Phasenverschiebung von  $\phi = 90^\circ$  des Laserpulses mit  $\lambda = 610$  nm gegen die 2. Harmonische zu sehen, vgl. Kap. 4.3.1. Vergleicht man Elektronenspektren des atomaren Wasserstoffs, die mit  $\lambda = 610$  nm bzw. mit  $\lambda = 305$  nm aufgenommen wurden, vgl. Kap. 4.1.3, so kann für die Bicolor-Multiphotonenionisation von einem Spektrum gesprochen werden, bei dem Anteile der Spektren beider Wellenlängen enthalten sind, wobei für die energetische Position der Elektronenmaxima keine Phasenabhängigkeit zu beobachten ist. Eine mögliche Deutung ist eine beliebige Zusammensetzung von Photonen beider Wellenlängen zur Erreichung der Ionisationsenergie.

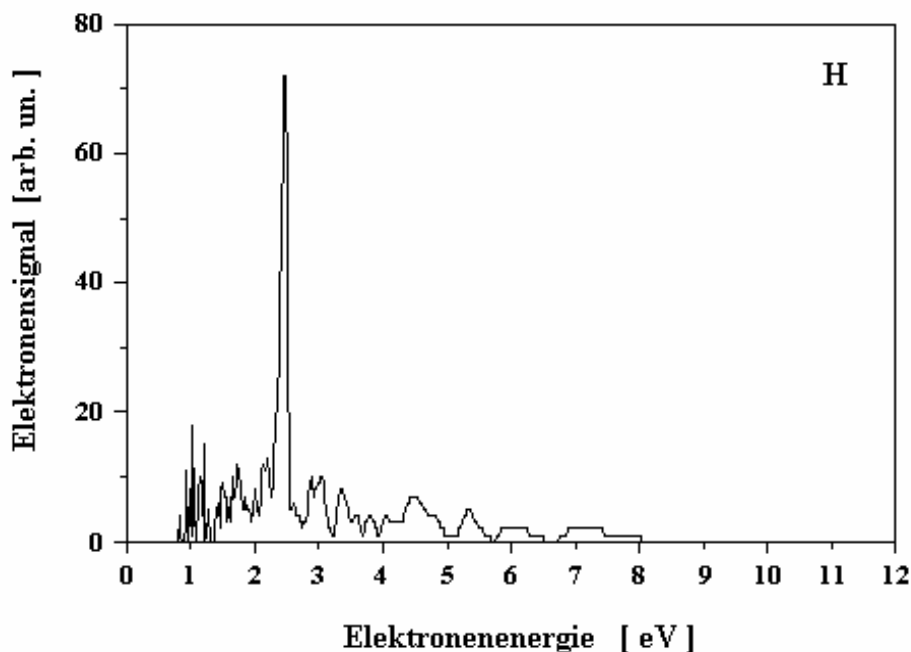


Bild 433.1 zeigt das ATI-Photoelektronenspektrum von atomarem Wasserstoff für die Zweifarbenanregung mit den Laserwellenlängen von 610 nm ( 400 fs ) und der 2.Harmonischen mit 305 nm ( 280 fs ). Beide Laserfelder haben eine vergleichbare Intensität von etwa  $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  und hier eine Phasenbeziehung von  $\phi=90^\circ$ .

Die theoretische Simulation der Messung, die von U. Lambrecht [LAM96] durchgeführt wurde, zeigt die zu erwartenden Positionen der ersten drei ATI-Maxima für zwei unterschiedliche Laserintensitäten, vgl. Bild 433.2, mit jeweils identischen Intensitäten der beiden Laserpulse mit  $\lambda = 610$  nm und  $\lambda = 305$  nm. Nur für das 2. und 3. ATI-Maximum ist bei einer Intensität von  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> eine Übereinstimmung mit den experimentellen Daten zu erkennen, während das 1. ATI-Maximum des gemessenen Spektrum aufgrund der eingeschränkten Detektionsmöglichkeit der Flugstrecke unterhalb 0,8 eV nicht beobachtet werden kann ( vgl. Kap. 3 ).

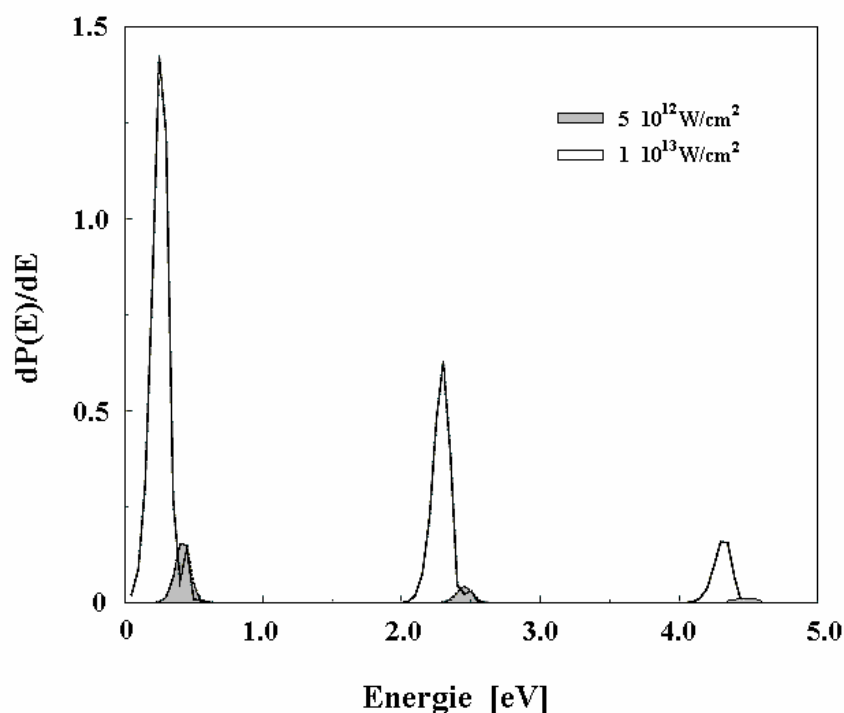


Bild 433.2 zeigt das theoretische Spektrum einer Zweifarbenmessung für atomaren Wasserstoff für die Laserwellenlängen 610 nm und 305 nm und für Intensitäten von  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> und  $0,5 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>. Die Intensitäten der Fundamentalen ( 610 nm ) und der zweiten Harmonischen ( 305 nm ) sind identisch [LAM96]. Die Rechnung ist für Pulsdauern von 40 fs durchgeführt worden.

Um das 1. ATI-Maximum nachweisen zu können, wird durch das Anlegen einer Spannung an die den Wechselwirkungsbereich abschirmenden Gitter ein Feld erzeugt, das die Photoelektronen in Richtung Flugstrecke nachbeschleunigt. Diese von den Elektronen zusätzlich aufgenommene kinetische Energie verschiebt das gesamte Ionisationsspektrum, insbesondere den niederenergetischen Teil in den Nachweisbereich der Flugstrecke und ermöglicht auf diese Weise die Identifizierung des Elektronenmaximums bei etwa 0,41 eV.

Das Bild 433.3 zeigt das unverschobene ( schwarz ) und das mit dem Beschleunigungsfeld verschobene phasenabhängige Wasserstoff-MPI-Spektrum ( rot ) zusammen mit dem nachgewiesenen ATI-Maximum bei 0,41 eV ( diese kinetische Energie entspricht der feldfreien Situation ).

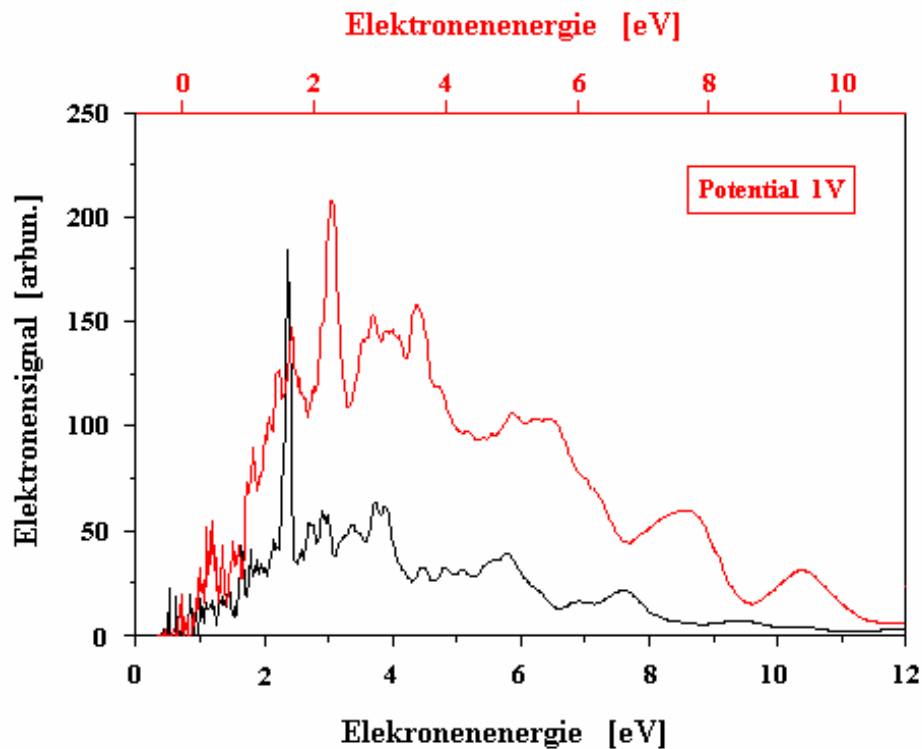


Bild 433.3 zeigt das Spektrum einer Zweifarbennmessung ( schwarze Kurve ) für atomaren Wasserstoff für die Laserwellenlängen 610 nm ( 400 fs ) und 305 nm ( 280 fs ). Beide Laserfelder haben gleiche Intensitäten von ca.  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. Die rote Kurve zeigt das gleiche Spektrum, wobei die Photoelektronen durch ein elektrisches Feld im Wechselwirkungsbereich eine zusätzliche kinetische Energie aufgenommen haben. Hier wird ein weiteres Elektronenmaximum sichtbar ( Pfeilmarkierung ), das bei der Aufnahme ohne Potential von der Flugstrecke nicht durchgelassen wird.

Für dieses Elektronenmaximum ist eine phasenabhängige Bicolor-Multiphotonenionisation durchgeführt worden, Bild 433.4, wobei das Laserfeld mit  $\lambda = 610$  nm ( 400 fs ) gegen die 2. Harmonische dieses Feldes mit  $\lambda = 305$  nm ( 280 fs ) phasenverschoben wurde. Beide Laserfelder haben eine identische Intensität von ca.  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>.

Zunächst kann festgestellt werden, daß eine starke Abhängigkeit des Elektronensignals vom Phasenwinkel zwischen beiden Laserfeldern besteht. Das Spektrum der niederenergetischen Photoelektronen mit etwa 0,41 eV weist zwei Signalmaxima für eine Phasenverschiebung im Bereich um  $\phi = 90^\circ$  und für den Bereich ab  $\phi = 270^\circ$  auf. Für  $\phi = 270^\circ$  interferieren die Laserfelder konstruktiv, sodaß hier die höchste elektrische Feldstärke in Richtung des

Detektors erreicht wird. Dieser Bereich ist allerdings nicht gleichbedeutend mit dem höchsten Signal der Photoelektronen, wie es für eine Tunnelionisation zu erwarten wäre. Zudem ist eine weitere typische Charakteristik einer Tunnelionisation, die symmetrische Entwicklung der Signalthöhe in beide Richtung der Phasenänderung bezüglich  $\phi = 270^\circ$  ( konstruktive Interferenz ) nicht gegeben und so kann dieser beobachtete Ionisationsprozeß als Multiphotonenionisation interpretiert werden.

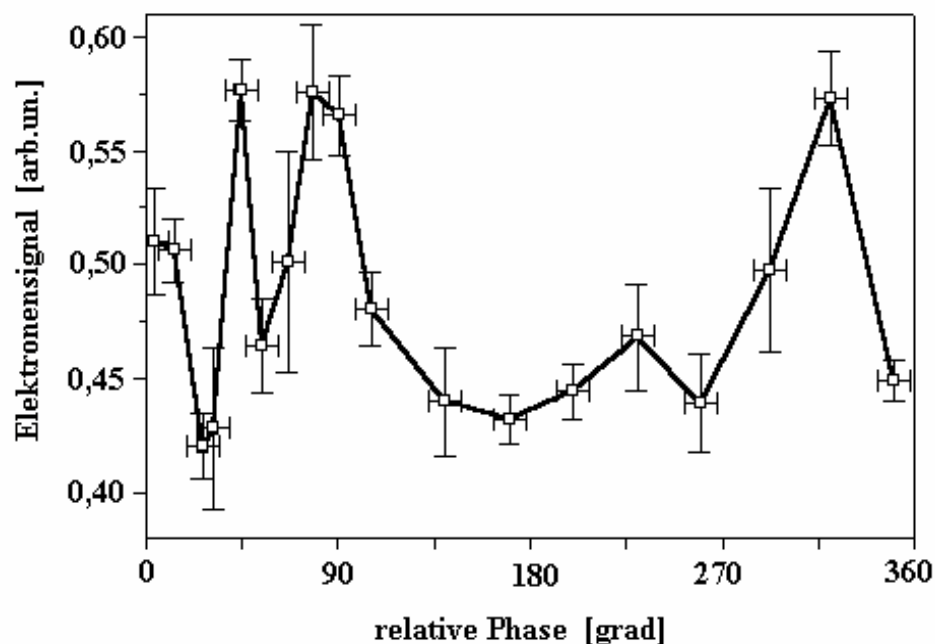


Bild 433.4 zeigt das phasenabhängige Bicolor-MPI-Elektronenspektrum von atomarem Wasserstoff für das Elektronenmaximum bei 0,41 eV, das mit den Laserwellenlängen von 610 nm ( 400 fs ) und 305 nm ( 280 fs ) und einer für beide Felder identischen Intensität von etwa  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> aufgenommen wurde. Die Phase der 610 nm Strahlung wurde gegen die des 305 nm Laserpulses verschoben.

Das bereits erwähnte theoretisches Modell, das von U. Lambrecht und M. Nurhuda in der Arbeitsgruppe von F.H.M. Faisal [LAM 96] entwickelt wurde, beschreibt winkelintegrierte Ergebnisse der phasenabhängigen Bicolor-Multiphotonenionisation für einzelne ATI-Maxima. Um das gemessene Spektrum mit der für die verwendeten Wellenlängen gerechneten Simulation vergleichen zu können, wurden die Meßergebnisse durch die Addition eines identischen, um  $\pi$  verschobenen Spektrums erweitert. Auf diese Weise kann



ein Datensatz generiert werden, der die für eine Richtung des elektrischen Feldes durchgeführte Messung näherungsweise um die in die entgegengesetzte Richtung der Detektorebene erweitert. Allerdings sollte dieses erzeugte „winkelintegrierte“ Spektrum nur als Tendenz für eine den gesamten Raumwinkel erfassende Messung verstanden werden.

Im Vergleich der experimentellen Daten mit den Modellrechnungen fällt zunächst das für beide Kurven erkennbare Minimum bei einer Phasenverschiebung um  $\phi = 180^\circ$  auf. Die weiteren Entwicklungen beider Spektren in Bereiche niedrigerer und höherer Phasenwinkel haben mit dem ansteigenden Elektronensignal im wesentlichen einen identischen Trend, vgl. Bild 433.5.

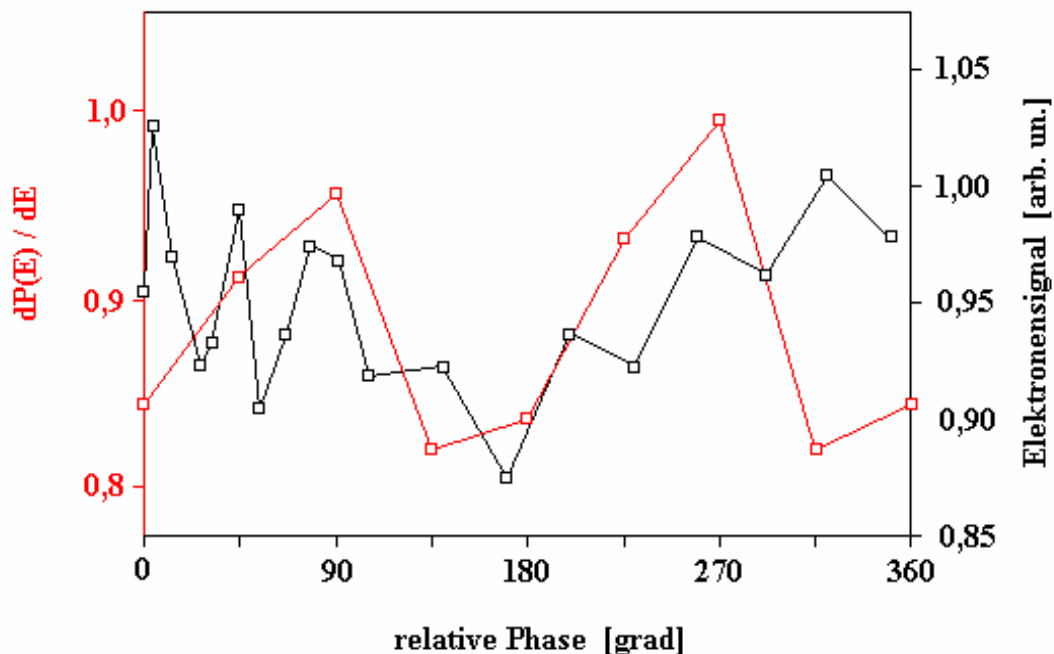


Bild 433.5 zeigt die theoretische Kurve [LAM 96] der Ionisationsrate des 1.ATI-Maximums bei 0,41 eV (rote Kurve). Da das Modell die gesamten Photoelektronen (winkelintegriert) für eine Elektronenenergie erfaßt, ist das experimentelle Spektrum des Bildes 432.4 für diese Gegenüberstellung in ein winkelintegriertes Spektrum erweitert worden (schwarze Kurve).

Eine phasenabhängige Messung für das Elektronenmaximum mit der kinetischen Energie von 2,45 eV zeigt Bild 433.6. Für diese Energie wird eine völlig andere Signalentwicklung gemessen, die ein minimales Elektronensignal bei der relative Phase der Laserfelder von  $\phi = 90^\circ$  aufweist und zusammen mit der zunehmenden elektrischen Feldstärke bis zu einer Phase von etwa  $\phi = 220^\circ$  zunimmt. Man kann bei dieser Entwicklung von einem

Multiphotonenionisation mit „Tunnelcharakter“ sprechen, da offensichtlich ein starker Zusammenhang zwischen Feldstärke und Signalhöhe besteht.

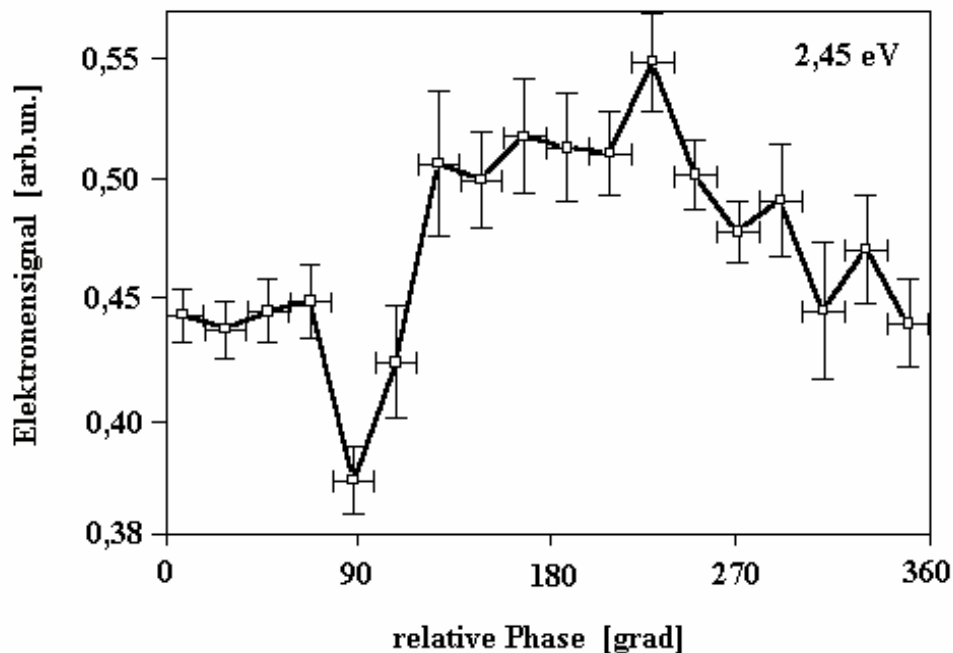


Bild 433.6 zeigt das phasenabhängige Bicolor-MPI-Elektronenspektrum von atomarem Wasserstoff für das Elektronenmaximum bei 2,45 eV, das mit den Laserwellenlängen von 610 nm ( 400 fs ) und 305 nm ( 280 fs ) und einer für beide Felder identischen Intensität von etwa  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> aufgenommen wurde.

Auch für diese kinetische Energie liegt eine Modellrechnung vor, die im folgenden Bild 433.7 den experimentellen Daten gegenübergestellt wird. Wieder ist, um den Vergleich zu ermöglichen, das gemessene Spektrum mit den um  $\pi$  verschobenen Daten addiert worden. Diese winkelintegrierten Werte werden durch das theoretische Spektrum [LAM 96] in den wesentlichen Bereichen außerordentlich gut nachgebildet. Es gibt zwei Phasenwerte mit minimaler Signalhöhe, die bei  $\phi = 90^\circ$  und bei  $\phi = 270^\circ$  auftreten, wobei auffällt, daß selbst die Signalhöhen annähernd vom Modell erfaßt werden. Zwischen den beiden Minima steigt das Signal bei  $\phi = 180^\circ$  und  $\phi = 360^\circ$ , wie auch in der Modellrechnung, zu etwa gleichen Höchstwerten an.

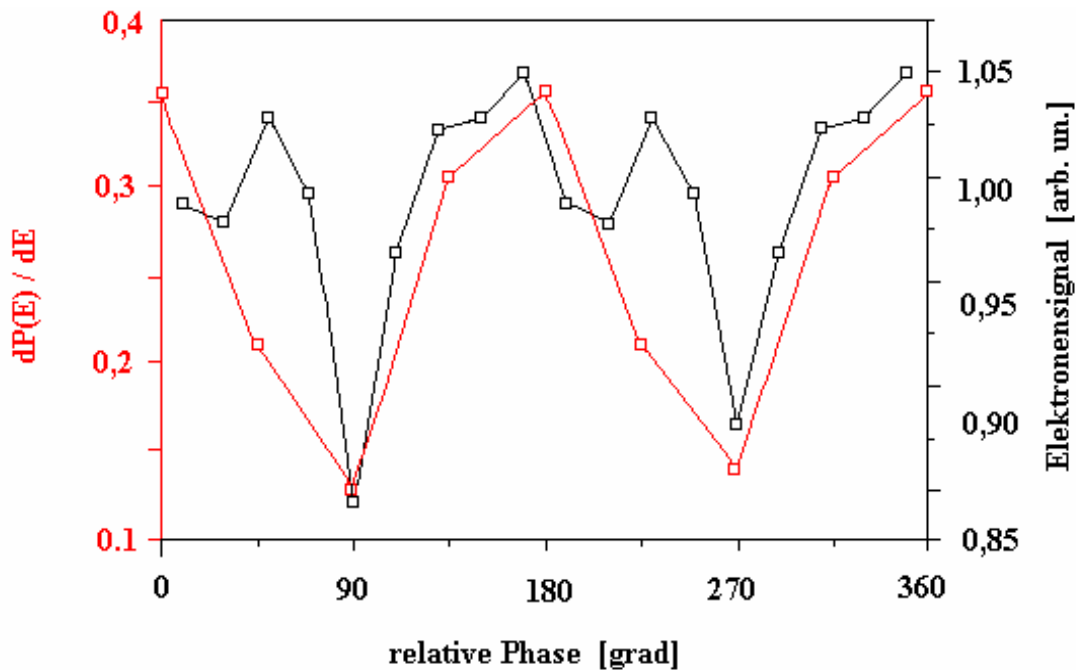


Bild 433.7 zeigt die theoretische Kurve [LAM 96] der Ionisationsrate des 2.ATI-Maximums bei 2,45 eV (rote Kurve). Da das Modell die gesamten Photoelektronen (winkelintegriert) für eine Elektronenenergie erfaßt, ist das experimentelle Spektrum des Bildes 432.6 für diese Gegenüberstellung in ein winkelintegriertes Spektrum erweitert worden (schwarze Kurve).

Für die kinetische Energie von 4,48 eV ist ebenfalls ein phasenabhängiges Spektrum mit den gleichen experimentellen Voraussetzungen detektiert worden, vgl. Bild 433.8. Der Kurvenverlauf der aufgenommenen Daten zeigt bei der geringsten Feldstärke, also bei  $\phi = 90^\circ$  ein minimales Elektronensignal, das mit zunehmendem elektrischen Feld ansteigt und bei etwa  $\phi = 270^\circ$  sein Maximum erreicht. Auch in diesem Fall kann davon ausgegangen werden, dass beide konkurrierenden Prozesse, der MPI-Prozess und die Tunnelionisation, die charakteristische Signatur im Spektrum hinterlassen.

Die Modellrechnung [LAM 96] für diese kinetische Energie gibt einen eher prinzipiellen Kurvenverlauf der experimentellen Daten wieder, vgl. Bild 433.9, wobei die Abweichungen in dieser Gegenüberstellung mit der geringen Signalstärke der Photoelektronen dieses Energiebereichs, also mit einer verminderten Aussagekraft der Meßwerte begründet werden könnten. Das Ausgangsspektrum ist zudem für diesen Theorievergleich mit dem gleichen, um  $\pi$  verschobenen Spektrum erweitert worden, sodass die angesprochene statistische Unsicherheit additiv in das winkelintegrierte Spektrum einfließt.

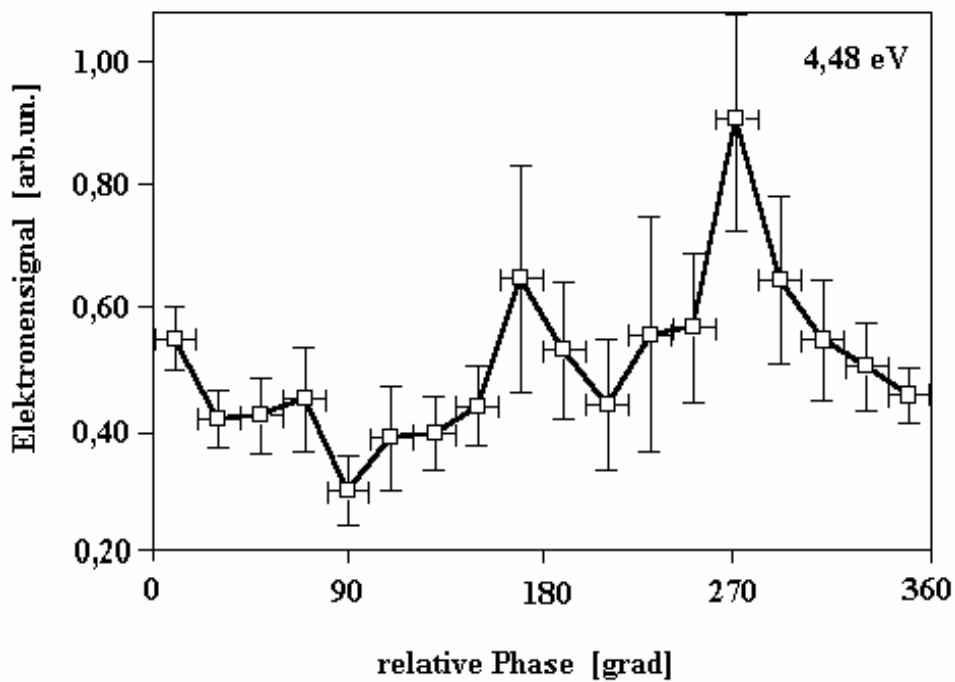


Bild 433.8 zeigt das phasenabhängige Bicolor-MPI-Elektronenspektrum von atomarem Wasserstoff für das Elektronenmaximum bei 4,48 eV, das mit den Laserwellenlängen von 610 nm ( 400 fs ) und 305 nm ( 280 fs ) und einer für beide Felder identischen Intensität von etwa  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> aufgenommen wurde.

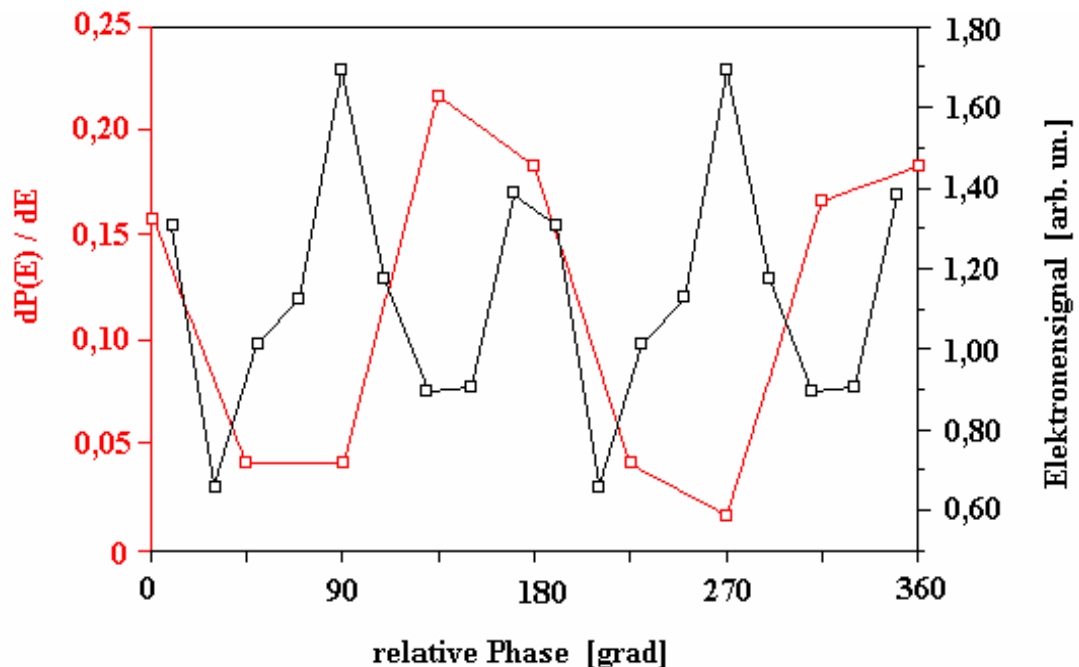


Bild 433.9 zeigt die theoretische Kurve [LAM 96] der Ionisationsrate des 3.ATI-Maximums bei 4,48 eV ( rote Kurve ). Das experimentelle Spektrum des Bildes 432.8 ist für diese Gegenüberstellung in ein winkelintegriertes Spektrum erweitert worden ( schwarze Kurve ).

Ein Vergleich der gemessenen phasenabhängigen Bicolor-MPI-Spektren zeigt, daß mit zunehmender Elektronenenergie, d.h. auch mit zunehmender Feldintensität der Charakter einer Tunnelionisation dominanter wird. Das Signalmaximum verschiebt in den Bereich des größten elektrischen Feldes, nach  $\phi = 270^\circ$ . Diese Entwicklung wird nicht nur durch die Rechnungen von F.H.M. Faisal et al. [LAM 96] bestätigt, sondern können sich auch auf Simulationen von K.J. Schafer und K.C. Kulander [KUL 92] stützen. Ihre Computersimulationen einzelner ATI-Maxima für atomaren Wasserstoff und für Wellenlängen von  $\lambda = 532$  nm und der 2. Harmonischen mit  $\lambda = 266$  nm prognostizieren ein hohes Elektronensignal für  $\phi = 0^\circ$  und einen starken Signalabfall für den Wert  $\phi = 90^\circ$ .

Ein weiterer, wichtiger Punkt für die Beurteilung der Art des Ionisationsprozesses ist die Symmetrie des Spektrums bezüglich des Feldmaximums. Bei den hier vorgestellten Messungen kann weder das für die Tunnelionisation typische Verhalten noch die daraus folgende  $\pi$  - Periodizität des Spektrums festgestellt werden.

### 4.3.4 Das phasenabhängige Bicolor-Elektronenspektrum von Xenon

In diesem Kapitel werden die Messungen für Xenon vorgestellt, die analog zum Experiment mit atomarem Wasserstoff die phasenabhängige Zweifarbenmultiphotonenionisation mit den Wellenlängen  $\lambda = 610 \text{ nm}$  ( 400 fs ) und  $\lambda = 305 \text{ nm}$  ( 280 fs ) und mit der Intensität jedes Laserfeldes von ca.  $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  beschreiben. Das erste Bild dieser Meßreihe, 434.1, zeigt zur Übersicht das Elektronenspektrum für eine Phasenverschiebung von  $\phi = 270^\circ$  der Strahlung mit  $\lambda = 610 \text{ nm}$  gegen die mit  $\lambda = 305 \text{ nm}$ . Dieses Spektrum setzt sich aus den beiden für jeweils eine Wellenlänge aufgenommenen Elektronenspektren zusammen ( vgl. Kap. 4.1.2 ) – mit der Einschränkung, daß diese Messung bei einer um eine Größenordnung geringeren Intensität gemacht wurde. Die Beobachtung, das es sich hier um ein „zusammengesetztes“ Spektrum handelt impliziert allerdings nicht, das die Ionisation, bzw.

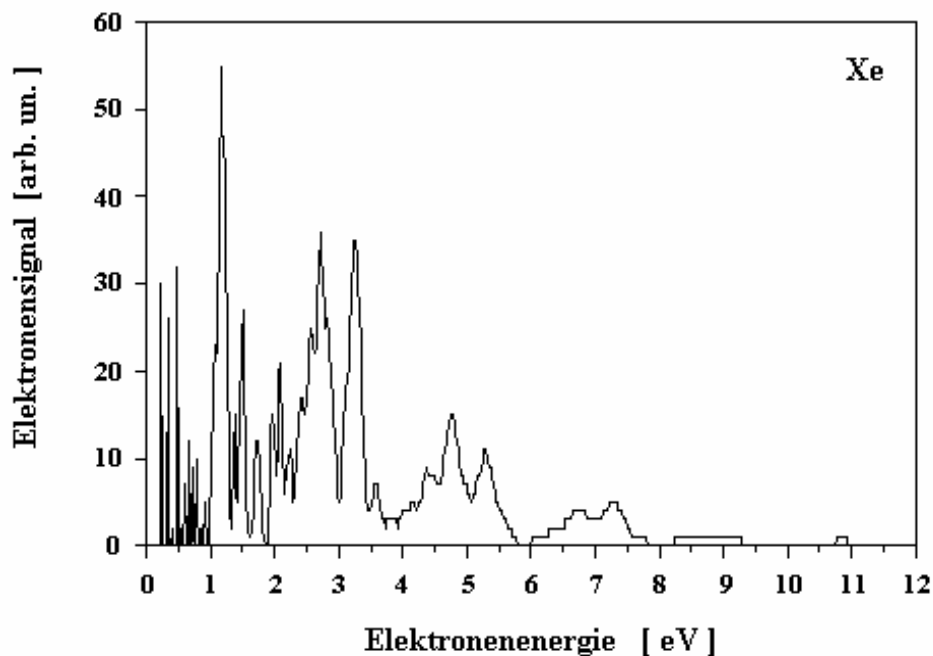


Bild 434.1 zeigt das ATI-Photoelektronenspektrum von Xenon für die Zweifarbenanregung mit den Laserwellenlängen  $\lambda = 610 \text{ nm}$  ( 400 fs ) und der 2. Harmonischen mit  $\lambda = 305 \text{ nm}$  ( 280 fs ). Beide Laserfelder haben eine vergleichbare Intensität von etwa  $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  und hier eine Phasenbeziehung von  $\phi = 270^\circ$ .

die Anregungsschritte mit denen der entsprechenden Einfarbenmultiphotonenionisation identisch sind.

Die energetischen Positionen der Elektronenmaxima zeigen keinen Hinweis auf eine Phasenabhängigkeit.

In dem theoretischen Modell für Xenon, das von U. Lambrecht aus der Gruppe F.H.M. Faisal [LAM 96] für dieses Experiment gerechnet wurde, sind die prognostizierten energetischen Positionen der Elektronenmaxima, ausgehend vom Xenon - Grundzustand  $5p_{3/2}$  mit den gemessenen Daten in guter Übereinstimmung, vgl. Bild 434.2. Das experimentelle Spektrum weist jedoch zusätzliche Maxima auf, die im Kapitel 4.1 Abbildung 41.9 zugeordnet wurden.

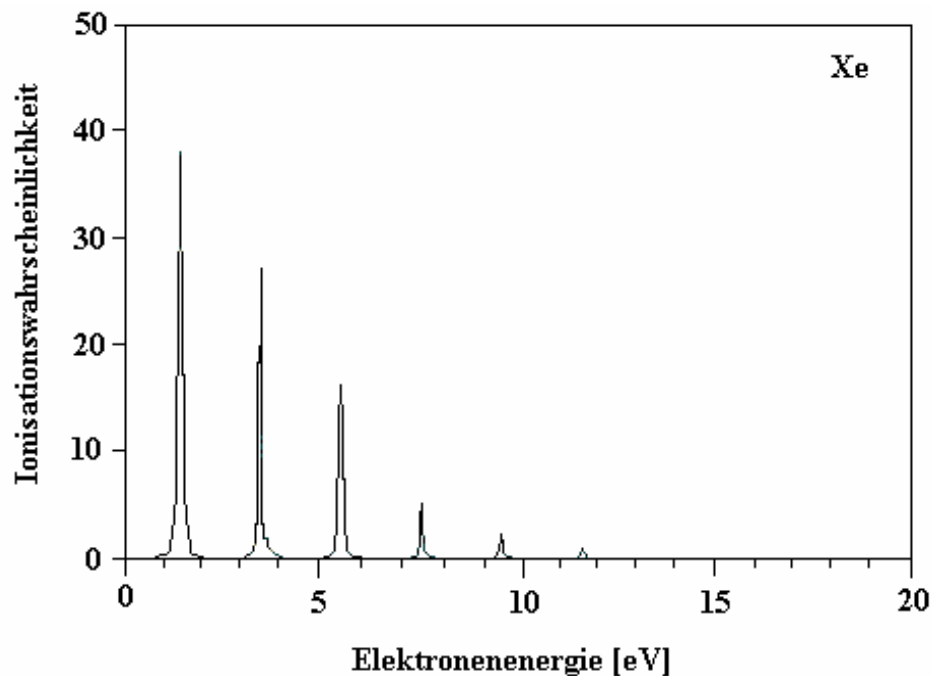


Bild 434.2 zeigt das theoretische Spektrum einer Zweifarbenmessung für Xenon für die Laserwellenlängen 610 nm und 305 nm und für Intensitäten von  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. Die Intensitäten der Fundamentalen,  $\lambda = 610$  nm, und der zweiten Harmonischen,  $\lambda = 305$  nm, sind identisch [LAM96]. Die Rechnung ist für Pulsdauern von 40 fs und für den Xenon-Grundzustand  $5p_{3/2}$  durchgeführt worden.

Das 1.ATI-Maximum bei 1,21 eV, für das ein phasenabhängiges Bicolor-MPI-Spektrum aufgenommen worden ist, vgl. Bild 434.3, zeigt zwei Elektronenmaxima im Bereich der Phasenwinkel  $\phi = 180^\circ$  und  $\phi = 0^\circ$  ( $360^\circ$ ). Ein direkter Zusammenhang der Entwicklung des Elektronensignals mit der Feldintensität des Zweifarbenfeldes kann für das Auftreten der Maxima nicht festgestellt werden. Offenbar ist es ein reiner Multiphotonenprozeß, der für diese Ionisation verantwortlich ist. Für den Vergleich der experimentellen Daten mit der winkelintegrierten Simulation dieses Prozesses [LAM96], ist eine Erweiterung des Spektrums

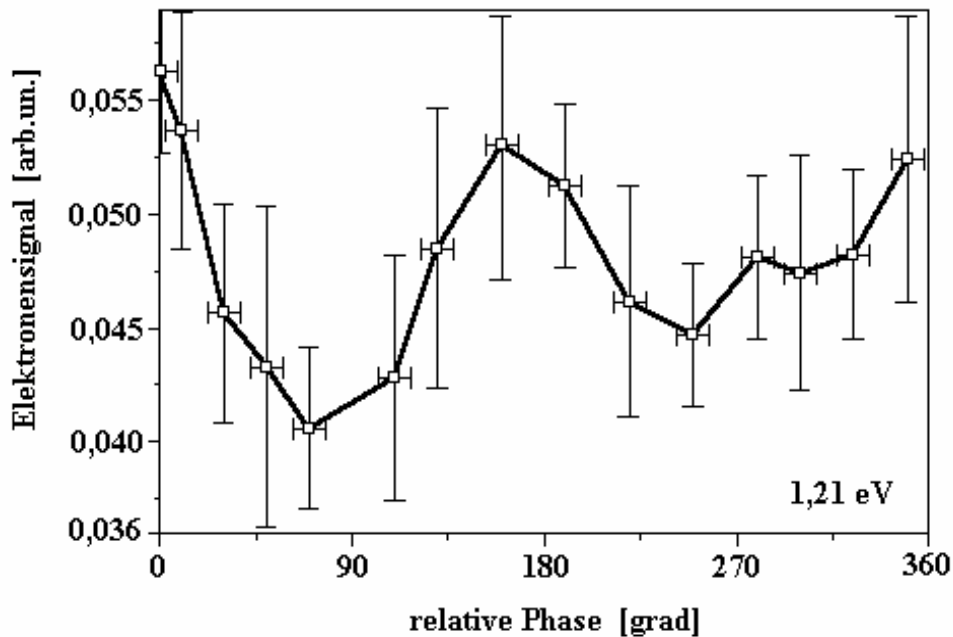


Bild 434.3 zeigt für Xenon die Phasenabhängigkeit des Elektronenmaximums bei 1,21 eV, das mit den Laserwellenlängen  $\lambda = 610 \text{ nm}$  ( 400 fs ) und  $\lambda = 305 \text{ nm}$  ( 280 fs ) und einer für beide Felder identischen Intensität von etwa  $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  aufgenommen wurde.

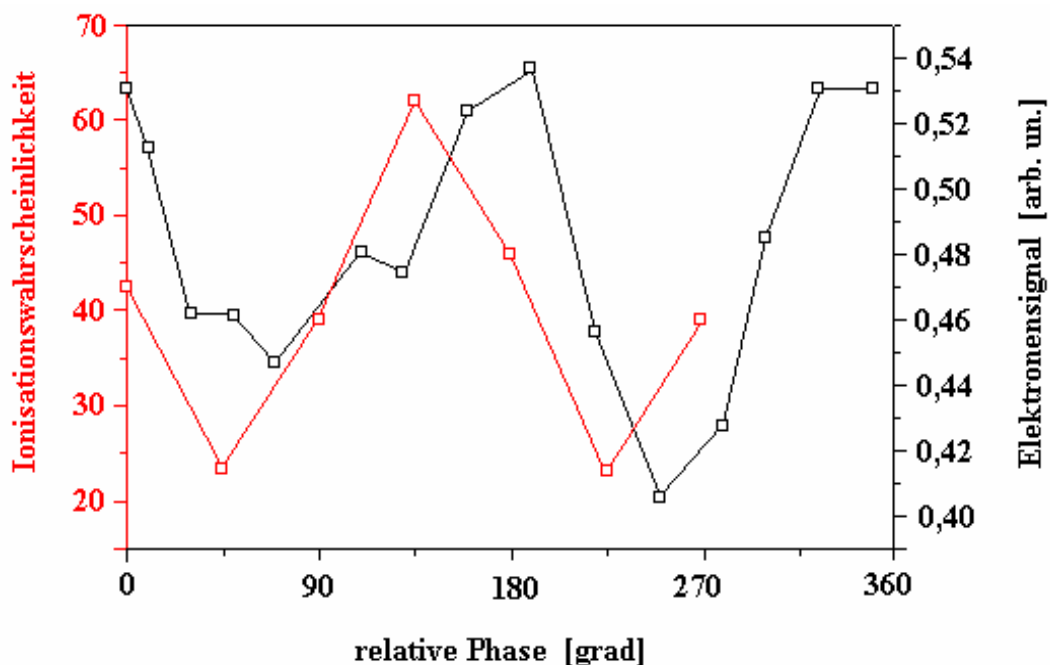


Bild 434.4 zeigt die theoretische Kurve [LAM 96] der Ionisationsrate des 1.ATI-Maximums bei 1,21 eV ( rote Kurve ). Da das Modell die gesamten Photoelektronen ( winkelintegriert ) für eine Elektronenenergie erfaßt, ist das experimentelle Spektrum des Bildes 433.3 für diese Gegenüberstellung in ein winkelintegriertes Spektrum erweitert worden ( schwarze Kurve ).



mit dem um  $\pi$  verschobenen Datensatz erforderlich. Die so „erzeugte“ winkelintegrierte Messung wird im Bild 434.4 dem Modell gegenübergestellt und zeigt, daß der tendentielle Verlauf der Meßdaten von der Simulation nur geringfügig abweicht: die Phasenwinkel der Signalminima sind  $\phi = 45^\circ$ ,  $\phi = 225^\circ$  (  $240^\circ$ exp. ) und der Maxima  $\phi = 135^\circ$  (  $150^\circ$ exp. ) und  $\phi = 315^\circ$ .

Eine weitere Messung ist für das Signalmaximum bei 3,26 eV durchgeführt worden, vgl. Bild 434.5, mit Elektronenmaxima im Bereich der Phasenwinkel  $\phi = 45^\circ$  und  $\phi = 200^\circ$ , wobei auch dieses Spektrum keine Charakteristik der Tunnelionisation zeigt.

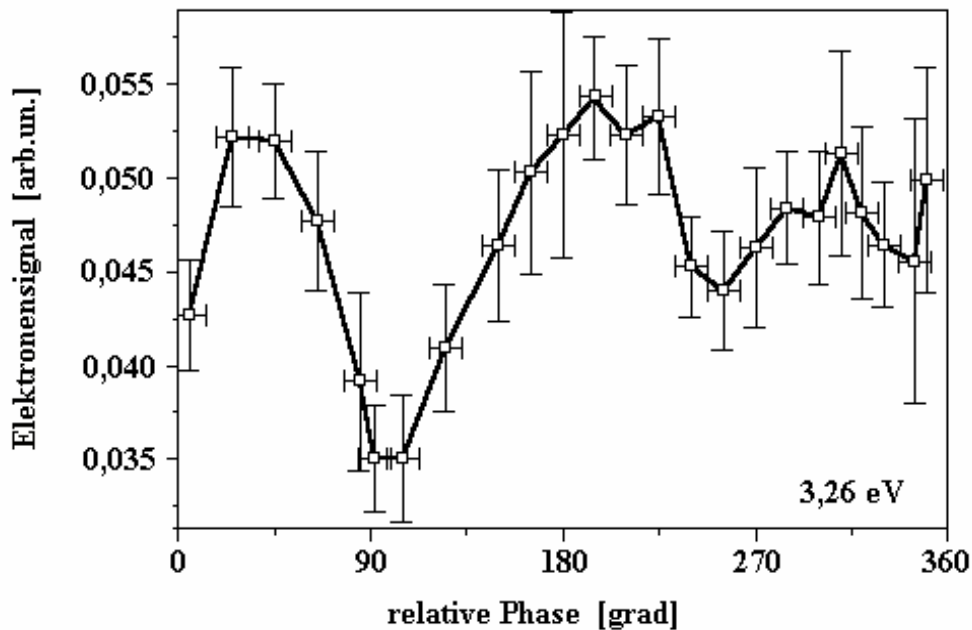


Bild 434.5 zeigt die Phasenabhängigkeit von Xenon für das Elektronenmaximum bei 3,24 eV, das mit den Laserwellenlängen  $\lambda = 610$  nm ( 400 fs ) und  $\lambda = 305$  nm ( 280 fs ) und einer für beide Felder identischen Intensität von etwa  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> aufgenommen wurde.

Das entsprechende theoretische Modell, vgl. [LAM 96], ist im nachfolgenden Bild 434.6 zusammen mit der Erweiterung der Meßdaten zu einem winkelintegrierten Spektrum aufgetragen. Der Verlauf beider Graphen wird durch eine Verschiebung der experimentellen gegenüber den theoretischen Daten charakterisiert, wobei die theoretischen Signalmaxima bei den Phasenwerten  $\phi = 45^\circ$  und  $\phi = 225^\circ$  um etwa  $\pm 20^\circ$  vom Experiment abweichen.

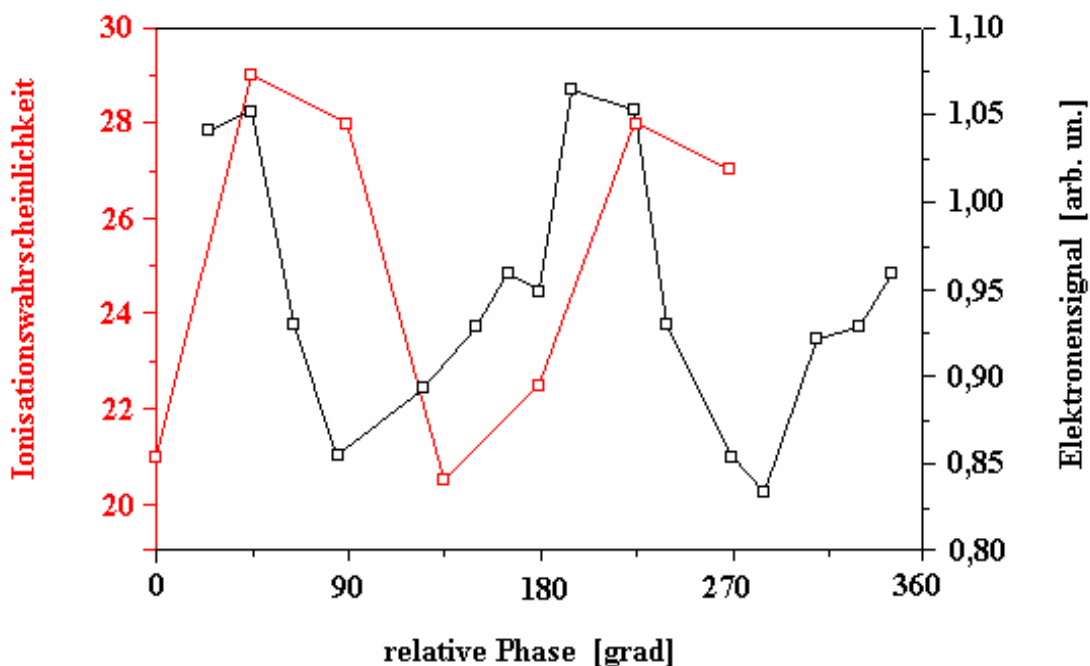


Bild 434.6 zeigt die theoretische Kurve [LAM 96] der Ionisationsrate des 2.ATI-Maximums für Xenon bei 3,24 eV (rote Kurve). Da das Modell die gesamten Photoelektronen (winkelintegriert) für eine Elektronenenergie erfaßt, ist das experimentelle Spektrum des Bildes 433.5 für diese Gegenüberstellung in ein winkelintegriertes Spektrum erweitert worden (schwarze Kurve).

Das 3.ATI-Maximum bei 5,27 eV, vgl. Bild 434.7, läßt gegenüber den beiden Vorrangegangenen keinerlei Symmetrie erkennen. Nach der typischen Signalreduktion bei dem Phasenwinkel  $\phi = 90^\circ$ , dies entspricht der minimalen Feldintensität, steigt das Signal auf ein Niveau an, das bis zu einem Winkel von  $\phi = 360^\circ$  nahezu gleichförmige Werte hat.

Die entsprechende Simulation, vgl. Bild 434.8 [LAM 96], liefert eine Kurve, die zu den winkelintegrierten experimentellen Daten diametral verläuft. Berechnete Signalminima bei den Phasenwinkeln  $\phi = 0^\circ$  und  $\phi = 180^\circ$  entsprechen deutlichen Maxima des experimentellen Ergebnisses.

Als letztes ATI-Maximum, das noch über eine ausreichende Signalintensität verfügt, wird das phasenabhängige Zweifarbenelektronenspektrum für die kinetische Energie von 7,3 eV untersucht. Das Spektrum, vgl. Bild 434.9, zeigt eine Signalentwicklung, die zunächst bei  $\phi = 90^\circ$  ein Minimum durchläuft und mit zunehmender Feldstärke bei  $\phi = 225^\circ$  die maximale Signalstärke erreicht, die mit steigendem Phasenwinkel wieder stark abnimmt. Auch hier ist weder ein symmetrisches Verhalten des Elektronensignal zu sehen, noch kann die Signalzunahme mit einer Tunnelionisation in Verbindung gebracht werden.

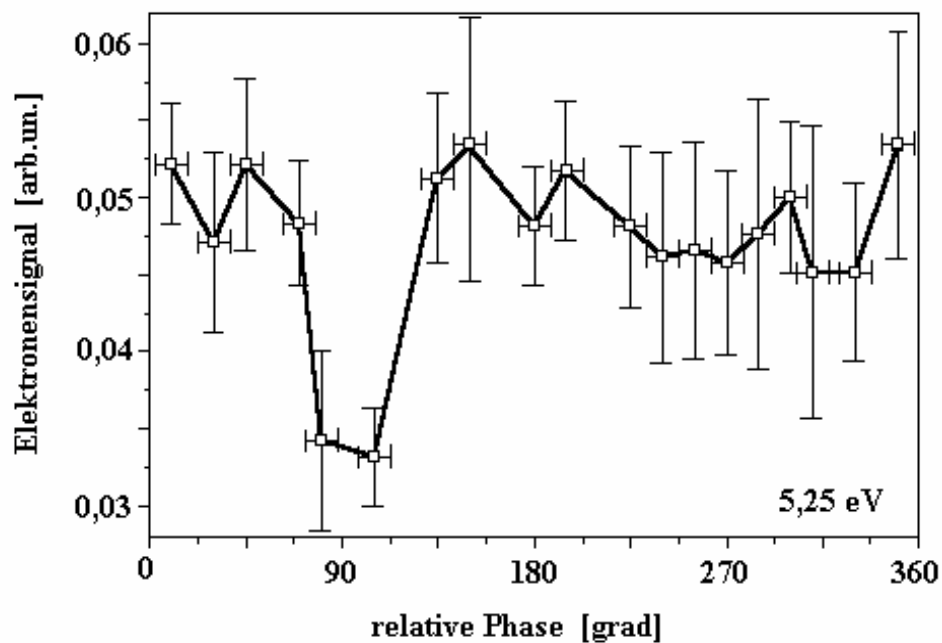


Bild 434.7 zeigt das phasenabhängige Bicolor-MPI-Elektronenspektrum von Xenon für das Elektronenmaximum bei 5,27 eV, das mit den Laserwellenlängen  $\lambda = 610$  nm ( 400 fs ) und  $\lambda = 305$  nm ( 280 fs ) und einer für beide Felder identischen Intensität von etwa  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> aufgenommen wurde.

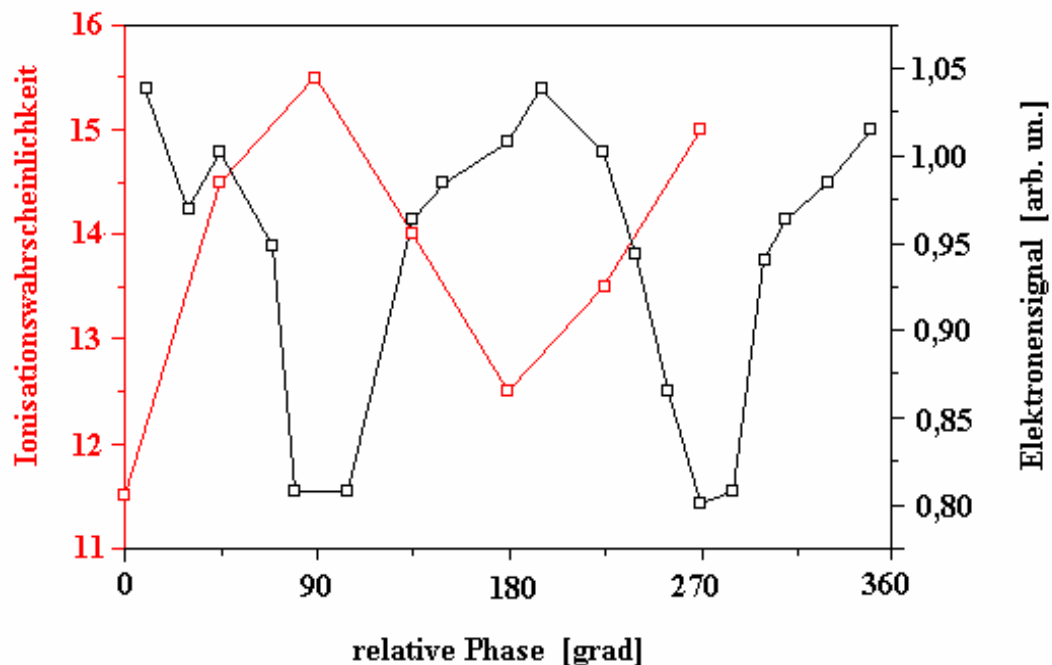


Bild 434.8 zeigt die theoretische Kurve [LAM 96] der Ionisationsrate des 3.ATI-Maximums bei 5,27 eV ( rote Kurve ). Das experimentelle Spektrum des Bildes 433.7 ist für diese Gegenüberstellung in ein winkelintegriertes Spektrum erweitert worden ( schwarze Kurve ).

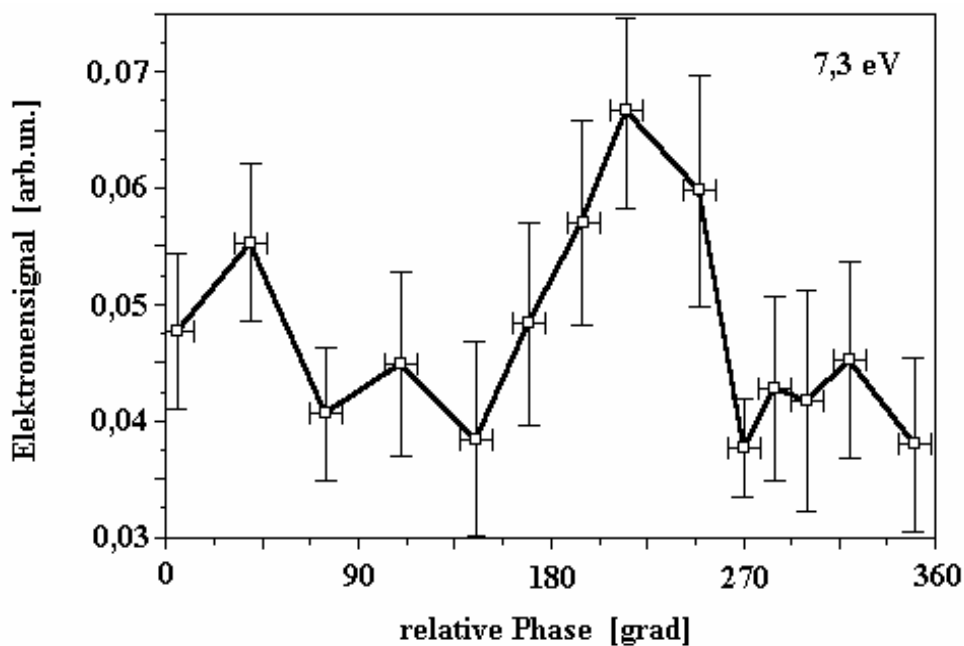


Bild 434.9 zeigt das phasenabhängige Bicolor-MPI-Elektronenspektrum von Xenon für das Elektronenmaximum bei 7,3 eV, das mit den Laserwellenlängen  $\lambda = 610$  nm ( 400 fs ) und  $\lambda = 305$  nm ( 280 fs ) und einer für beide Felder identischen Intensität von etwa  $1 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> aufgenommen wurde.

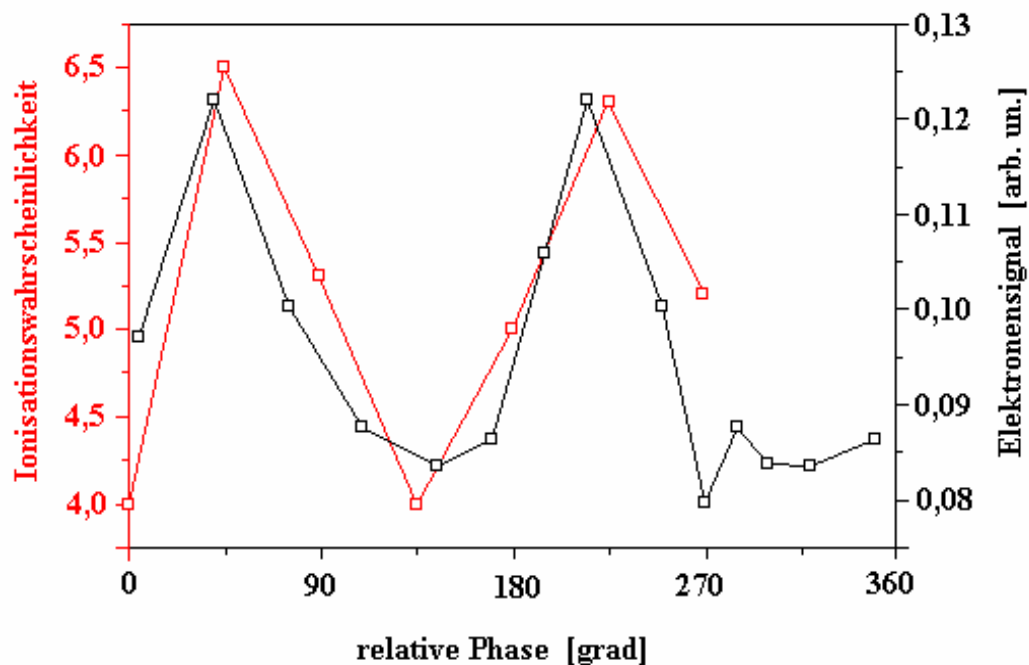


Bild 434.10 zeigt die theoretische Kurve [LAM 96] der Ionisationsrate des 4.ATI-Maximums bei 7,3 eV ( rote Kurve ). Das experimentelle Spektrum des Bildes 433.9 ist für diese Gegenüberstellung in ein winkelintegriertes Spektrum erweitert worden ( schwarze Kurve ).

Der Vergleich mit der Modellrechnung [LAM96], vgl. Bild 434.10, zeigt eine außerordentlich gute Parallelität beider Kurvenverläufe, wobei sowohl die Phasen der maximalen Signalwerte  $\phi = 45^\circ$  und  $\phi = 225^\circ$  als auch die der Minima  $\phi = 135^\circ$  und  $\phi = 315^\circ$  für die experimentellen und theoretischen Daten identisch sind.

Betrachtet man alle untersuchten phasenabhängigen Xenon Bicolor-MPI-Spektren, so kann in keiner Messung eine Symmetrie des Elektronensignals bezüglich des maximalen Feldes bei  $\phi = 270^\circ$  beobachtet werden. Allerdings ist mit zunehmender kinetischer Elektronenenergie die Tendenz auffällig, daß eine Signalzunahme für größere Phasenwinkel existiert und daher kann, analog zu den Messungen am atomaren Wasserstoff, eine wachsende Bedeutung der Tunnelcharakteristik für die Ionisation vermutet werden. Obwohl die Substruktur, also die diskreten Elektronenmaxima, weiterhin sichtbar bleiben und D.W. Schumacher, P.H. Bucksbaum [BUC 96] daher eine Tunnelionisation ausschließen, gehen P. Agostini et al. [AGO 93] davon aus, daß das Vorhandensein dieser Substruktur nicht per se einer Tunnelionisation widerspricht. Eine Floquet-Rechnung des Problems für Wasserstoff von R. Shakeshaft, R.M. Potvliege und M. Dörr [SHA 90] läßt in der Übergangsphase zwischen MPI und Tunnelionisation das Auftreten resonanter Strukturen zu.

D.W. Schumacher, P.H. Bucksbaum und H.G. Muller [SCH 96] [MUL 93] haben den phasenabhängigen Bicolor MPI-Prozeß mit Laserstrahlung der Wellenlänge  $\lambda = 1064$  nm ( Fundamentale ) und einer Pulsdauer von 100 ps untersucht und kommen zu Ergebnissen, die mit den Simulationen von K.J. Schafer und K.C. Kulander [KUL 92] qualitativ erklärt werden konnten. Diese Spektren können bedingt mit den hier diskutierten Ergebnissen verglichen werden, wobei sowohl die phasenabhängige Signalentwicklung als auch die Veränderungen der Spektren zu höheren kinetischen Elektronenenergien die gleiche, oben beschriebene tendentielle Entwicklung zeigen.

### 4.3.5 Das phasenabhängige Bicolor-Ionenspektrum von atomarem Wasserstoff und Xenon

Die winkelintegrierte Erfassung aller Ionisationsereignisse ist für diese Apparatur nur mit einem Feld möglich, das alle im Wechselwirkungsvolumen entstandenen Elektronen oder Ionen in die Nachweisrichtung beschleunigt. Da die Ionen durch den MPI-Prozeß keine zusätzliche kinetische Energie aufnehmen und daher identische Startbedingungen vorausgesetzt werden können, werden im folgenden Ionenspektren für eine Aussage über die Gesamtionisation des phasenabhängigen Zweifarben-MPI-Prozesses diskutiert.

Ein typisches Ionenspektrum des atomaren Wasserstoffs wurde bereits im Kapitel 4.3.1 vorgestellt, vgl. Bild 431.6 (c). Es handelt sich um den Nachweis von Ionen, die durch einen phasenabhängigen Zweifarben-MPI-Prozeß entstanden sind, der mit den Laserwellenlängen  $\lambda = 610 \text{ nm}$  ( 400 fs ) und  $\lambda = 305 \text{ nm}$  ( 280 fs ) und einer für beide Farben identischen Intensität von  $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  durchgeführt wurde. Dieses Gesamtionisationssignal ist für eine Phasenverschiebung von 0 bis  $2\pi$  detektiert worden und zeigt die im folgenden Bild 435.1 dargestellte Verteilung. Es sind deutliche Maxima bei  $\Theta = 90^\circ$  und  $\Theta = 270^\circ$  zu erkennen. Bei diesen Phasenwinkeln erreicht die Amplitude des Bicolorfeldes Maximalwerte.

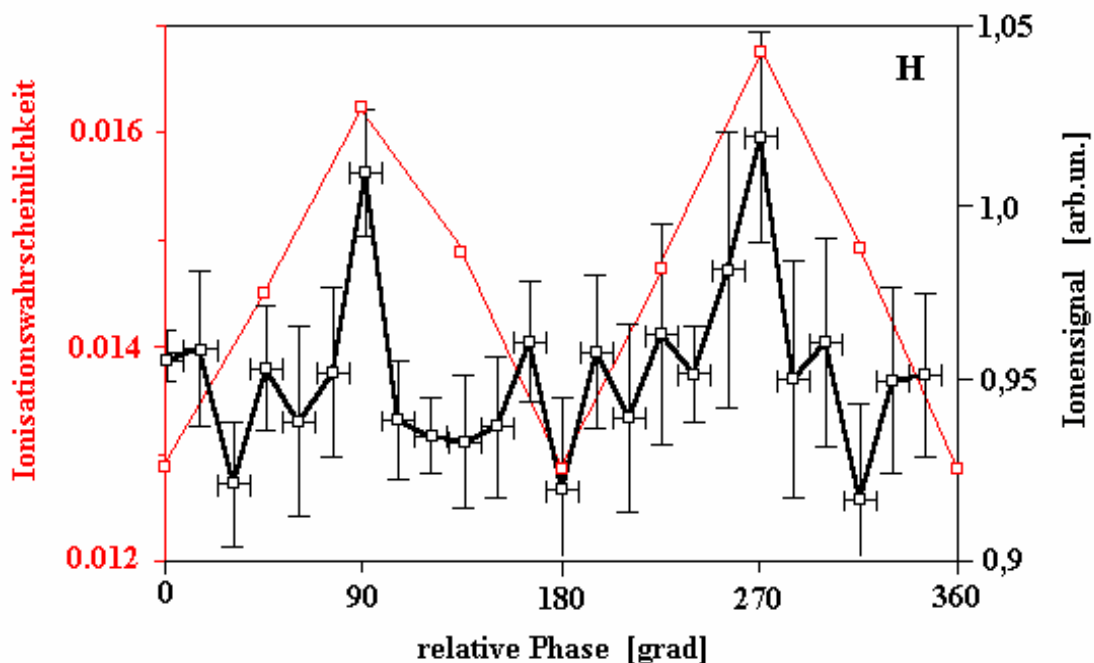


Bild 435.1 zeigt das Gesamtionenspektrum ( schwarze Kurve ) von atomarem Wasserstoff für die phasenabhängige Zweifarbenanregung mit den Laserwellenlängen  $\lambda = 610 \text{ nm}$  ( 400 fs ) und der 2.Harmonischen  $\lambda = 305 \text{ nm}$  ( 280 fs ). Die theoretisch bestimmte Ionisationswahrscheinlichkeit [LAM96] ( roter Graph ) ist den experimentellen Daten gegenübergestellt.

Eine Computersimulation der totalen Ionisation für atomaren Wasserstoff für diese experimentellen Bedingungen von U. Lambrecht [LAM 96], ist im Bild 435.1 als rote Kurve den experimentellen Daten, schwarzer Graph, gegenübergestellt worden. Sehr deutlich ist die ausgezeichnete Übereinstimmung von Experiment und Modell für die Phase der minimalen und maximalen Signalintensität zu erkennen.

Vergleichbare Ergebnisse zeigen die Rechnungen von K.J. Kulander und K.C. Schafer [KUL 92], deren berechnete phasenabhängige Ionisationsrate für die fundamentale Wellenlänge  $\lambda = 660 \text{ nm}$  und für die Intensität von  $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  (vgl. Bild 43.2) die experimentellen Ergebnisse nachbilden kann.

Für Xenon ist eine äquivalente Messung der phasenabhängigen Zweifarbenmultiphotonenionisation durchgeführt worden. Das Flugzeitspektrum der Ionen zeigt neben der Einfachionisation  $\text{Xe}^+$  auch ein Maximum, das der Zweifachionisation zugeordnet werden kann, vgl. Bild 435.2. Die Phasenabhängigkeit der  $\text{Xe}^+$  und  $\text{Xe}^{++}$ -Ionisation zeigt das folgende Bild 435.3. Bei beiden Spektren treten die Maximalwerte des Ionensignals in Bereichen um  $\phi = 90^\circ$  und  $\phi = 270^\circ$  auf, wobei deutlich wird, daß für das Spektrum der Zweifachionisation, also für höhere Feldstärken, eine stärkere Reaktion auf die Phasenänderung beider Felder zu beobachten ist.

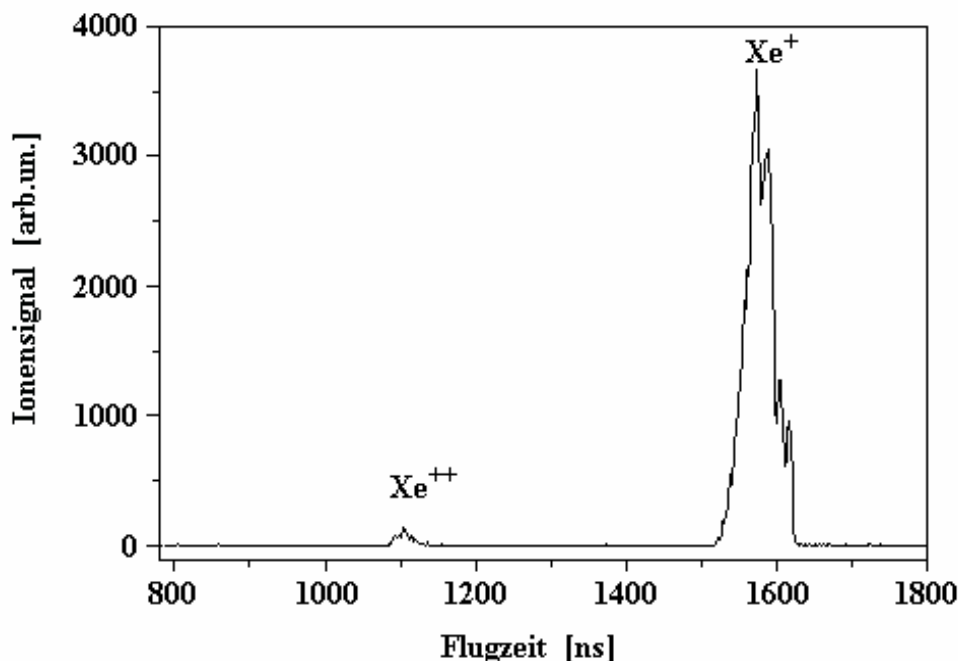


Bild 435.2 zeigt ein Ionenflugzeitspektrum von Xenon für die Zweifarbenmultiphotonenionisation mit den Wellenlängen  $\lambda = 610 \text{ nm}$  ( 400 fs ) und  $\lambda = 305 \text{ nm}$  ( 280 fs ) und der Intensität von ca.  $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . Das Ionenspektrum ist mit einer Phasendifferenz von  $\phi = 270^\circ$  aufgenommen worden und zeigt neben der Einfachionisation von Xenon  $\text{Xe}^+$  auch die Zweifachionisation  $\text{Xe}^{++}$ .

Nach einer Addition der integrierten Ionensignale der  $Xe^+$  und  $Xe^{++}$  - Spektren, kann eine phasenabhängige Gesamtionisation dargestellt werden, vgl. Bild 435.4. Das theoretische, für die totale Ionisation gerechnete Xenonspektrum [LAM 96], ist als rote Kurve in diese Graphik aufgenommen worden und zeigt eine Entwicklung, die in der Tendenz die experimentellen Daten beschreibt. Die zwei dominanten Maxima des Ionensignals befinden sich, ebenso wie die Maxima des Modells, in den Bereichen um  $\phi = 90^\circ$  und  $\phi = 270^\circ$ .

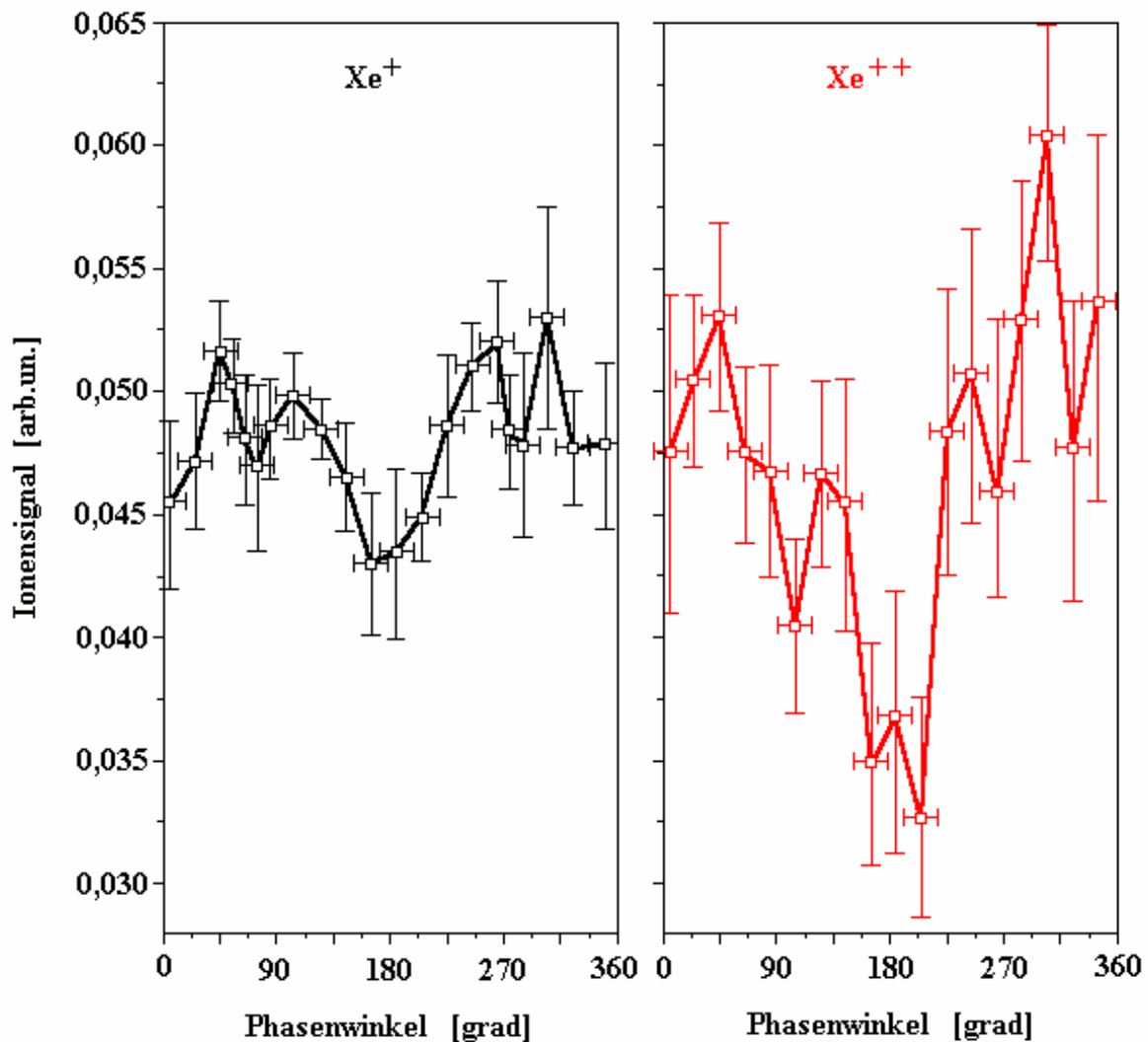


Bild 435.3 zeigt das Ionenspektrum der phasenabhängigen Zweifarbanregung von Xenon mit den Laserwellenlängen  $\lambda = 610 \text{ nm}$  ( 400 fs ) und der 2.Harmonischen mit  $\lambda = 305 \text{ nm}$  ( 280 fs ) mit identischer Intensität von ca  $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . Der schwarze Graph dokumentiert die Ergebnisse für die Einfachionisation, die rote Kurve die der Zweifachionisation



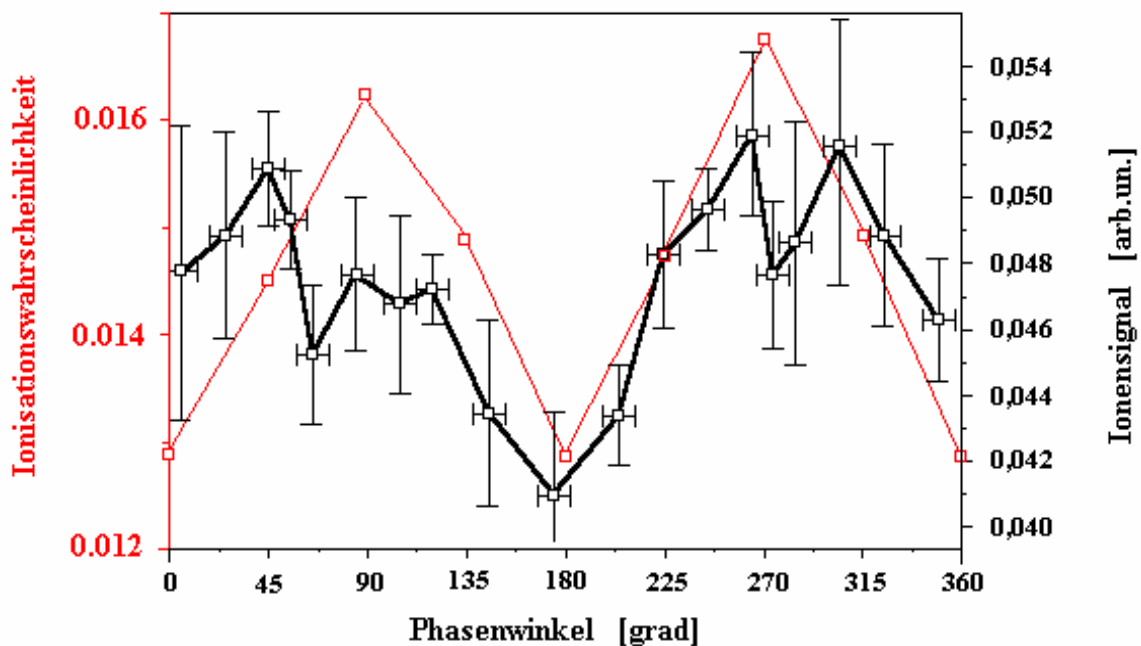


Bild 435.4 zeigt das Gesamtionenspektrum ( schwarze Kurve ) von Xenon für die phasenabhängige Zweifarbenanregung mit den Laserwellenlängen  $\lambda = 610$  nm ( 400 fs ) und der 2.Harmonischen mit  $\lambda = 305$  nm ( 280 fs ). Beide Laserfelder haben eine identische Intensität von  $1 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$ . Die theoretisch bestimmte Ionisationswahrscheinlichkeit [LAM96] ( roter Graph ) ist den experimentellen Daten gegenübergestellt.

Der Vergleich mit den theoretischen Daten von K.J. Kulander und K.C. Schafer [KUL 92] für eine Feldintensität von  $3 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$  zeigt wie für das Wasserstoff-Ionenspektrum eine Übereinstimmung mit dem Experiment. Die Diskrepanz in der Bestimmung der Laserintensität zwischen Modell und Experiment wurde schon von D.W. Schumacher und P.H. Bucksbaum [SCH 96] bei ihren Messungen an Xenon beobachtet und führte dort zu einem Korrekturfaktor von  $\sim 2$ .

Intensitätsabhängige Messungen einer Mehrfachionisation an Xenon, die für eine Überprüfung der Mindestintensität für den Nachweis der Zweifachionisation von mir mit einer Wellenlänge  $\lambda = 610$  nm durchgeführt wurden, registrieren ein  $\text{Xe}^{++}$ -Signal beginnend zwischen  $3 - 4 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$ . Die Untersuchung von L.D. Van Woerkom et al. [WOE 96] liefert vergleichbare Resultate, wobei hier eine genaue Bestimmung des Entstehungsortes mehrfachionisierten Xenons im Laserfokus mit dem Ergebnis vorgenommen wurde, daß lediglich in einem kleinen zentralen Fokusbereich die erforderlichen hohen Feldstärken existieren.

Eine den gesamten Laserstrahl erfassende Intensitätsmessung führt zu gemittelten Werten, die von kleinen Teilbereichen im Strahlquerschnitt überschritten werden können. Aus diesem Grund sind in kleinen Bereichen des Fokus in der Wechselwirkungszone Intensitätspitzen möglich.

## 5 Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden MPI-Prozesse an atomarem Wasserstoff und an Xenon mit einem Lasersystem untersucht, das Pulse mit der Wellenlänge  $\lambda = 610\text{nm}$  und  $\lambda = 305\text{ nm}$  mit einer Pulsdauer von 400 fs bzw. 280 fs zur Verfügung stellt, wobei die Pulsenergie der Fundamentalen ( $\lambda = 610\text{nm}$ ) mit 2,5 mJ gemessen wurde. Es sind Experimente zu den Themen: Winkelverteilungen der Photoelektronen, Rydbergatome nach dem Multiphotonenprozeß und Phasenabhängigkeit von Bicolor-MPI-Prozessen durchgeführt worden.

Die Winkelverteilungen der Photoelektronen für Xenon für einen 7 bzw. 8-Photonenprozeß zeigen Übergänge vom Grundzustand in das 4f, 5g, 6g und 7p Niveau für die Laserwellenlänge  $\lambda = 610\text{ nm}$ . Zustände mit niedriger Hauptquantenzahl konnten aufgrund der hohen Laserintensität für ATI-Gruppen  $\geq S0$  detektiert werden, wobei Übergänge mit  $\Delta l = +1$  bevorzugt stattfinden und damit die Zunahme je eines Drehimpulsquants pro ATI-Gruppe in den Winkelverteilungen festgestellt wurde. Bei weiteren, neuen Messungen mit der Wellenlänge  $\lambda = 305\text{ nm}$  sind zwei Ionisationsprozesse ausgehend von den Grundzuständen  $^2p_{1/2}$  und  $^2p_{3/2}$  über resonante d - Zwischenzustände mit einer Hauptquantenzahl  $n > 6$  in der S0 und S1 ATI-Gruppe nachgewiesen worden.

Für atomaren Wasserstoff ergaben die Messungen der Winkelverteilungen, daß Übergänge unter Nutzung der Zwischenzustände 2s, 4f, 5g, 6f, 7f und 8f für die Laserwellenlänge  $\lambda = 610\text{ nm}$  stattfinden und hierfür eine gute Übereinstimmung mit den theoretischen Ergebnissen von Y. Gontier und M. Trahin [GON 90] und Rechnungen von J.S. Briggs et al. [BRI 88] existiert. Weiterhin sind Winkelverteilungen der „Extra-Peak-Serie“ mit dem Nachweis sehr hoher Drehimpulsquantenzahlen aufgenommen worden, und können als Indiz für die Anregung hoher Rydbergzustände gewertet werden.

Der mit einer Wellenlänge  $\lambda = 305\text{ nm}$  initiierte MPI-Prozeß, eine 4-Photonenionisation, läßt nur einen energetisch kleinen Bereich für einen resonanten Zwischenschritt zu, in dem die 3p Resonanz als Zwischenzustand zur Ionisation führt und in der S0 und S1 ATI-Gruppe beobachtet werden konnte.

Messungen von Atomen, die in Rydbergzuständen nach dem Multiphotonenprozeß erhalten bleiben, sind mit linear sowie zirkular polarisierter Laserstrahlung durchgeführt worden. Für Strahlung mit linearer Polarisierung wurden Xenonatome in den Rydbergzuständen 4f, 5f und 6f nachgewiesen, wobei ein weiteres Elektronenmaximum für Rydbergzustände mit  $n \geq 10$  nicht aufgelöst werden konnte. Das Verhältnis der durch den MPI-Prozeß ionisierten Atome zu den in „population traps“ erhalten gebliebenen ist mit etwa 7 % bestimmt worden. Eine anschließende Untersuchung mit zirkular polarisierter Laserstrahlung zeigt nach einer 6-

Photonenionisation, daß etwa 5 % der Xenonatome im 6h Zustand während des Multiphotonenprozesses nicht ionisiert wurden. Ein von H.G. Muller et al. [MUL 93] gerechnetes Modell, basierend auf der LOPT, zeigt die Möglichkeit dieser Übergänge für Xenon auf.

Für atomaren Wasserstoff ist eine weitere Untersuchung unter den oben genannten experimentellen Bedingungen durchgeführt worden mit dem Ergebnis, daß für linear polarisierte Laserstrahlung insgesamt 5 % der Atome in Rydbergzuständen mit  $n \geq 10$  nachgewiesen werden konnten. In Messungen mit zirkularer Polarisation sind ebenfalls Rydbergatome nach dem Multiphotonenprozeß mit  $n = 8, l = 7$  und  $n = 9, l = 8$  beobachtet worden. Diese Ergebnisse stützen die Interpretation einer Messung eines MPI-Prozesses am atomaren Wasserstoff, bei der Elektronenmaxima nahe der Photonenenergie beobachtet wurden – die „Extra Peak Serie“ [FEL 92]. Voraussetzung für das Modell sind Wasserstoffatome, die in hohen Rydbergzuständen den Multiphotonenprozeß „überleben“.

Die erstmals gelungene Untersuchung von Bicolor-MPI-Prozessen an atomarem Wasserstoff, die mit Laserpulsen der Wellenlängen  $\lambda = 610 \text{ nm}$  ( 400 fs ) und der 2. Harmonischen mit  $\lambda = 305 \text{ nm}$  ( 280 fs ) mit identischer Intensität von  $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  angeregt wurden, zeigt ein phasenabhängiges Verhalten des Photoelektronensignals. Für Elektronenmaxima mit der kinetischen Energie 0.41 eV, 2.45 eV und 4.48 eV sind die Phasenabhängigkeiten im Bereich 0 bis  $2\pi$  gemessen und mit den theoretischen Simulationen von F.H.M. Faisal et al. [LAM 96] und den Rechnungen von K.J Schafer und K.C. Kulander [KUL 92] verglichen worden. Beide Modelle liefern eine gute Nachbildung der charakteristischen Entwicklung der experimentellen Daten, wobei mit zunehmender Photoelektronenenergie die Signatur der Tunnelionisationscharakteristik auffällt – hier ist die phasenabhängige Signalzunahme mit der wachsenden Feldintensität gekoppelt.

Entsprechende Ergebnisse sind für die phasenabhängige Bicolor-Multiphotonenionisation von Xenon aufgenommen worden. Spektren für die Elektronenenergien 1.21 eV, 3.26 eV, 5.27 eV und 7.3 eV zeigen eine Phasenabhängigkeit, die im wesentlichen auf einen Multiphotonenprozeß schließen läßt. Neben der asymmetrischen Struktur der Spektren bezüglich der maximalen Feldintensität ist auch die gesamte Entwicklung der Spektren sowohl mit den Rechnungen von K.J Schafer und K.C. Kulander [KUL 92] kompatibel als auch mit den Messungen von D.W. Schumacher und P.H. Bucksbaum [BUC 96] eingeschränkt vergleichbar, da diese Messung mit der Photonenenergie von 1,17 eV und 100 ps Pulsdauer ausgeführt wurden.

Die in diesem experimentellen Aufbau mögliche Detektion von Ionen wurde für eine winkelintegrierte phasenabhängige Bicolor-MPI-Messung genutzt und ist in ihren Ergebnissen sowohl für atomaren Wasserstoff als auch für Xenon in guter Übereinstimmung mit Berechnungen von F.H.M. Faisal et al. [LAM 96] sowie K.J Schafer und K.C. Kulander [KUL 92]. Zwei detektierte Maxima korrelieren direkt mit dem Intensitätsmaxima des Bicolorfeldes, also der konstruktiven Interferenz der beteiligten Laserfelder, bei Phasenwinkeln von  $90^\circ$  und  $270^\circ$ . Bei der Aufnahme des phasenabhängigen Bicolor-MPI-Spektrums von Xenon ist die Detektion der phasenabhängigen Doppelionisation gelungen. Dieser für eine Intensität von etwa  $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  detektierte Prozeß zeigt eine große Dynamik des

Signalverlaufs und deutet damit auf den mit der Feldintensität zunehmenden Einfluß der Tunnelionisation hin.

### **Ausblick :**

Eine weitergehende Untersuchung der Bicolor-MPI-Prozesse wäre zunächst mit einer um den Faktor 2 unterschiedlichen Intensität der Fundamentalen und 2. Harmonischen und auch mit einem größeren Wellenlängenunterschied z.B.  $\omega_1$  und  $\omega_3$  sinnvoll, um genaueren Aufschluß über die Frage nach dem für den Starkshift und dem für den Ionisationsprozeß verantwortlichen Feld und dessen Einflußnahme auf den MPI-Prozeß zu bekommen.

Eine weitere, den experimentellen Aufbau betreffende Option, ist die Erzeugung atomaren Wasserstoffs durch eine thermische Dissoziation. Der in der Testphase befindliche Aufbau mit elektronengeheizter Kapillare kann hohe Dissoziationraten, eine einstellbare Dichte des Wasserstoffstrahls und durch eine differentielle Pumpstufe einen um eine Größenordnung geringeren Druck im Detektionsbereich realisieren.

Mit einer ebenfalls bereits realisierten Apparatur wird eine völlig andere Detektionsweise ermöglicht, bei der die nach dem MPI-Prozeß expandierende Elektronenwolke mit einem Führungsfeld auf einem Detektorschirm als zirkulare Struktur abgebildet wird. Für jeden Prozeß ist hier eine simultane Bestimmung der Elektronenenergie und einer vollständigen Winkelverteilung möglich.

**6 Literaturverzeichnis**

- [ ABE 62 ] I.Abella  
Phys.Rev.Lett. Vol. 9, 1962, (453)
- [ AGO 68 ] P.Agostini, G.Barjot, F.Bonnal, G.Mainfray, C.Manus  
IEEE J.Quantum. Electron. QE-4, 1968, (667)
- [ AGO 79 ] P.Agostini, F.Fabre, G.Mainfray, G.Petite, N.Rahmann  
Phys.Rev.Lett. Vol.42, 1979, (1127)
- [ AGO 89 ] P.Agostini, P.Breger, A.L`Huillier, H.Muller, G.Petite  
Phys.Rev.Lett. 63, 1989, (2208)
- [ AGO 93 ] E.Mevel, P.Breger, R.Trainham, G.Petite, P.Agostini  
Phys.Rev.Lett. Vol. 70, No. 4, 1993, (406)
- [ ALKALI ] \* J.E.Hall  
IEEE QE – 2, 1966, (361)  
\* J.E.Rizzo, R.C.Klewe  
British Journal of Applied Physics Vol. 17, 1966, (1137)  
\* T.Okuda, K.Kishi, K.Sawada  
Applied Physics Letters Vol. 15, 1969, (181)  
\* R.A.Fox, R.M.Kogan, E.J.Robinson  
Phys.Rev.Lett. Vol. 26, 1971, (1416)  
\* G.A.Delone, N.B.Delone, G.K.Piskova  
JETP Vol. 35, 1972, (672)  
\* D.Feldmann, J.Krautwald, S.L.Chin, A.v.Hellfeld, K.H.Welge  
Journal of Physics B Vol. 15, 1982, (1663)
- [ BAS 88 ] M.Bashkansky, P.H.Buckbaum, D.W.Schumacher  
Phys.Rev.Lett. Vol.60, 1988, (2458)
- [ BEC 76 ] G.Beck  
Rev. Sci. Instrum., Vol. 47, 1976, (849)
- [ BET 57 ] H.A.Bethe, E.E.Salpeter  
*Quantum Mechanics of One Electron Atom* Springer Verlag, 1957

- [ BI-EX ] \* H.Rottke, B.Wolff, M.Tapernon, K.H.Welge, D.Feldmann  
Z.Phys.D Vol. 15, 1990, (133)  
\* H.Rottke, B.Wolff, M.Brickwede, D.Feldmann, K.H.Welge  
Phys.Rev.Lett. Vol. 64, 1990, (404)  
\* D.Feldmann  
*Comments on Atomic and Molecular Physics XXIV*, 1990, (311)  
\* M.Dörr, D.Feldmann, R.M.Potvliege, H.Rottke, R.Shakeshaft,  
K.H.Welge, B.Wolff J. Phys. B Vol. 25, 1992, (L275)  
\* Y.Gontier, M.Trahin, B.Wolff, H. Rottke, K.H.Welge, D.Feldmann  
Phys.Rev.A Vol. 46, 1992, (5594)  
\* H.Rottke, D.Feldmann, B.Wolff, K.H.Welge  
J.Phys. B Vol. 26, 1993, (L15)  
\* D.Feldmann, J.Reiner, B.Wolff-Rottke, K.H.Welge  
J.Phys. B Vol. 26, 1993, (271)  
\* H.Rottke, B.Wolff-Rottke, D.Feldmann, K.H.Welge, M.Dörr,  
R.M.Potvliege, R.Shakeshaft Phys.Rev. A ,1994  
\* D.Feldmann, H.Rottke, K.H.Welge, B.Wolff-Rottke  
in *Superintense Laser-Atom Physics* Eds.: B.Piraux, A.L.Huiller,  
K.Rzazewski Plenum Publ.Corp. 1993/94  
\* D.Feldmann, H.Rottke, B.Wolff-Rottke, K.H.Welge  
in *Multiphoton Physics*, Eds.:S.L.Chin, K.Evans, P.Corkum  
World Scientific Publ.Comp., 1994  
\* J.Gauer, D.Feldmann  
in *Super-Intense Laser-Atom Physics IV* Eds.: H.G.Muller  
M.V.Fedorov, Kluver Academic Publishers 1996, (123)
- [ BOR 88 ] Z.Bor  
Journal Of Modern Optics, Vol.35, No.12, 1988, (1907)
- [ BRO 64 ] F.C.Fehsenfeld, K.M.Evenson, H.P.Broida  
Rev.Sci.Instrum. Vol.36, No.3, 1965, (294)
- [ BLO 74 ] M.D.Levenson, N.Bloembergen  
Phys.Rev.Lett. 32, 1974, (645)
- [ BRÄ 80 ] P.Bräunlich  
*Multiphoton Spectroscopy* , 1980, (785, 805)
- [ BRI 88 ] G.Kracke, H.Marxer, J.T.Broad, J.S.Briggs  
Z.Phys. D – Atoms, Molecules and Clusters 8, 1988, (103)
- [ BRO 79 ] E.J.Murphy, J.H.Brophy  
Rev.Sci.Instrum.Vol.50, No.5, 1979, (635)

- [ BUCH ] \* M.Mittleman, 1982, *Theory of Laser- Atom Interaction*  
(New York, Plenum)  
\* S.Chin and P.Lambropoulos, 1984, *Multiphoton Ionisation of Atoms*  
(New York, Academic)  
\* N.Delone, V.Krainov, 1984, *Atoms in Strong Light Fields*  
(Berlin, Springer)  
\* S.Lin, 1984, *Advances in Multiphoton Processes and Spectroscopy*  
(Singapore, World Scientific)  
\* F.H.M.Faisal, 1987, *Theory of Multiphoton Processes*  
(New York, Plenum)  
\* A.Bandrauk, 1988, *Atomic and Molecular Processes with Short  
Intense Laser Pulses*, (New York, Plenum)  
\* M.Gavrila, 1991, *Atoms in Intense Radiation Fields*
- [ BUC 87 ] P.H.Bucksbaum, R.R.Freeman, M.Bashkansky, T.J.McIlrath  
J. Opt. Soc. Am. Vol 4, No 5, 1987, ( 760 )
- [ BUC 90 ] P.H.Bucksbaum, D.van Woerkom, R.Freeman, D.W.Schumacher  
Phys.Rev.A, Vol.41, 1990, (4119)
- [ BUC 93 ] R.R.Jones, D.W.Schumacher, P.H.Bucksbaum  
Phys.Rev. A Vol.47, 1993, (R49)
- [ BUC 96 ] D.W.Schumacher, P.H.Bucksbaum  
Phys.Rev. A Vol.54 No. 5, 1996, (4271)
- [ BUR 91 ] V.C.Reed, K.Burnett  
Phys.Rev.A Vol. 43, 1991, (6217)
- [ CAS 92 ] F.Benvenuto, G.Casati, D.L.Shepelyansky  
*Stability of Rydberg atoms in a strong laser field*  
Dipartimento di Fisica dell'Università, Via Celoria, Milano
- [ CHE 90 ] C.Chen, Y-Y.Yin, D.S.Elliot  
Phys.Rev.Lett. Vol. 64, 1990, (507)
- [ CHI 84 ] S.L.Chin, P.Lambropoulos  
*Multiphoton Ionisations of Atoms*, Academic Press, 1984
- [ COO 68 ] J.Cooper, R.N.Zare  
J.Chem.Phys. 48, 1968, (942)
- [ COR 89 ] P.B.Corkum, N.H.Burnett, F.Brunel  
Phys.Rev.Lett. Vol. 62, 1989, (1259)

- [ COR 92 ] P.B.Corkum, N.H.Burnett, F.Brunel  
„*Atoms in intense laser fields*“ ed.by M.Gavrila  
Academic Press, Boston, 1992
- [ CRA 90 ] M.Crance  
J. Opt. Soc. Am. B7, 1990, (449)
- [ DEB 94 ] M.P.deBoer, J.H.Hoogenraad, R.B.Vrijen, R.C.Constantinescu,  
L.D.Noordam, H.G.Muller  
Phys.Rev. A, Vol. 50, No. 5, 1994, (4085)
- [ DEL 85 ] N.B.Delone, V.P.Krainov  
*Atoms in Strong Light Fields*, Springer Ser. Chem. Phys. Vol 28, 1985
- [ DEL 87 ] N.B.Delone, M.V.Fedorov  
Prog. Quant. Electr. Vol. 13, 1989, ( 267 )
- [ DEL 89 ] N.B.Delone, M.V.Fedorov  
Prog.Quant.Electr. Vol. 13, 1989, (267)
- [ DEL 90 ] N.B.Delone, M.Y.Ivanov, A.L.Nefedov  
International Conference on Multiphoton Processes V, Paris (1990)  
„*Multiphoton Processes*“ G.Mainfray, P.Agostini
- [ DEL 94 ] N.B.Delone, V.P.Krainov  
*Multiphoton Processes in Atoms* Springer Verlag 1994 (22)
- [ DIM 93 ] P.Agostini, L.F.DiMauro  
Phys.Rev. A Vol.47 Nr. 6, 1992, (R4573)
- [ DIX 80 ] S.Dixit, P.Lambropoulos  
Phys.Rev. A Vol. 21, 1980, (168)
- [ DÖR 90a ] M.Dörr, R.M.Potvliege, R.Shakeshaft  
Phys. Rev. Lett. Vol 64 Nr 17 , 1990, (2003)
- [ DÖR 90b ] M.Dörr, R.M.Potvliege, R.Shakeshaft  
Phys. Rev. A Vol. 41, 1990, (558)
- [ DÖR 90c ] M.Dörr, R.M.Potvliege, R.Shakeshaft  
J.Opt.Soc.Am. Vol. B 7, 1990, (443)



- [ DÖR 92 ] M.Dörr, D.Feldmann, R.Potvliege, H.Rottke, R.Shakeshaft, K.H.Welge  
J.Phys. B : At. Mol. Phys. Vol. 25, 1992, (L 275)
- [ EDGA ] \* S.L.Chin, N.R.Isenor, M.Young  
Phys.Rev. Vol. 188, 1969, ( 7 )  
\* P.Agostini, G.Barjot, G.Mainfray, C.Manus, J.Thebault  
IEEE QE – 6, 1970, (782)  
\* C.Lecompte, G.Mainfray, C.Manus, F.Sanchez  
Phys.Rev. A Vol. 11, 1975, (1009)  
\* L.A.Lompre, G.Mainfray, C.Manus, J.Thebault  
Phys.Rev. A Vol. 15, 1977, (1604)  
\* A.L Huillier, L.A.Lompre, G.Mainfray, C.Manus  
Journal of Physics B Vol. 16, 1983, (1363)  
\* T.S.Luk, U.Johann, H.Egger, H.Pummer, C.K.Rhodes  
Phys.Rev. A Vol. 32, 1985, (214)
- [ EDE 74 ] S.Edelstein, M.Lambropoulos, J.Duncanson, R. S.Berry  
Phys.Rev. A Vol. 9, 1974, (2459 )
- [ FACH ] \* W.Cook, T.Mc Ilrath  
J.Opt.Soc.Am. B Vol. 4, 1987, (701)  
\* K.Burnett, M.Hutchinson  
J.Mod.Opt. Vol. 36, 1989, (811)  
  
\* K.Kulander, A.L`Huillier  
J.Opt.Soc.Am. B Vol. 7,1990, (502)
- [ FAI 87 ] F.H.M.Faisal  
*Theory of Multiphoton Processes*, Plenum Press, 1987
- [ FAI 92 ] F.H.M.Faisal, P.Scanzano  
Phys.Rev.Lett. Vol.68 No.19, 1992, (2909)
- [ FAN 85 ] U.Fano  
Phys.Rev. A 32, 1985, ( 617 )
- [ FED 91 ] M.V.Federov, G.Mainfray, P.Agostini  
*Multiphoton Processes* CEA Paris, 1991, (89)
- [ FEH 65 ] F.C.Fehsenfeld, K.M.Evenson, H.P.Broida  
Rev. Sci. Instrum., Vol. 36, 1965, (294)
- [ FEL 87 ] D.Feldmann, B.Wolff, M.Wemhöner, K.H.Welge  
Z.Phys.D – Atoms, Molecules and Clusters Vol.6, 1987, (293)

- [ FEL 89 ] H.Rottke, B.Wolff, M.Tapernon, K.H.Welge, D.Feldmann  
Z.Phys.D. – Atoms,Molecules & clusters 15, 1989, (133)
- [ FEL 90 ] D. Feldmann  
Comments At. Mol. Phys. 24, 1990, (311)
- [ FEL 92 ] H.Rottke,B.Wolff-Rottke,D.Feldmann  
J.Phys.B:At.Mol.Opt.Phys.Vol.26, 1993, (L15)
- [ FLO 83 ] N.Floquet  
Ann.Ecole.Norm.Sup.2, XIII, 1883, (47)
- [ FRE 86 ] R.R.Freeman, T.J.McIlrath, P.H.Bucksbaum, M.Bushkansky  
Phys.Rev.Lett Vol. 57, 1986, (3156)
- [ FRE 87 ] R.Freeman, P.Bucksbaum, H.Milchberg, S.Darack, D.Schumacher,  
M.Geusic Phys.Rev.Lett. Vol. 59, No. 10, 1987, (1092)
- [ FRI 90 ] H.Friedrich  
*Theoretische Atomphysik*, Springer Verlag, 1990
- [ GAU 96 ] J.Gauer, D.Feldmann  
*Super-Intense Laser-Atom Physics IV*, Kluver Akademic Publisher 1996
- [ GIO 60 ] J.A.Giordmaine, T.C.Wang  
J.Appl.Phys. Vol. 31/3, 1960, (463)
- [ GOE 31 ] M.Goeppert-Mayer  
Ann.Phys. Vol. 9, 1931, (273)
- [ GON 80 ] Y.Gontier, M.Poirier, M.Trahin  
J.Phys.B: At.Mol.Phys. Vol.13 (259)
- [ GON 85 ] Y.Gontier, N.K.Rahman, M.Trahin  
Phys.Rev.A, Vol. 34, 1985, (1112)
- [ GON 89 ] Y.Gontier, M.Trahin  
J.Opt.Soc.Am.B, Vol.7, 1990, (463)
- [ GON 90 ] Y.Gontier, M.Trahin  
J. Opt.Soc.Am. Vol. B 7, 1990, (463)
- [ GON 92 ] Y.Gontier, M.Trahin  
Phys.Rev.A Vol.46,1992, (1488)

- [ GOT 89 ] Y.Gontier, M.Trahin  
Phys. Rev. A Vol. 40, 1989, (1351)
- [ GRA 50 ] V.Hughes, L.Grabner  
Phys.Rev. Vol. 79, 1950, (314)
- [GRO 85 ] R.Grobe, K.Rzazewski  
Phys.Rev.A, Vol. 33, 1985, (1855)
- [ GUO 98 ] L.Gao, X.Li, P.Fu, D.S.Guo  
Phys.Rev. A Vol. 58, No. 5, 1998, (3807)
- [ HAL 65 ] J.Hall, E.Robinson, L.Branscomb  
Phys.Rev.Lett. Vol. 14, 1965, (1013)
- [ HAL 80 ] K.L.Sala, G.A.Kenny-Wallace, G.E.Hall  
IEEE J. Quantum Electronics Vol. QE-16, No.9, 1980, (990)
- [ HEI 95 ] G.Heilmann  
Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1995
- [ HEL 64 ] K.H.Hellwege  
*Einführung in die Physik der Atome*, Springer Verlag 1964
- [ HEL 93 ] H.Helm, N.Bjerre, M.J.Dyer, D.L.Huestis, M.Saeed  
Phys.Rev.Lett., Vol. 70, 1993, (3221)
- [ HER 84 ] J.Hermann, B.Wilhelmi  
*Laser für ultrakurze Lichtpulse*, Physik Verlag Weinheim, 1984
- [ HEU 88 ] J.W.Verschuur, L.D.Noordam, J.H.Bonnie, H.B.van Linden van den  
Heuvell Chem.Phys.Lett. Vol. 146, 1988, (283)
- [ HEU 90 ] J.W.Verschuur,L.D.Noordam, J.Los, P.Breger, A.Migus, Antonetti  
H.B.vanLinden van den Heuvell J.Chem.Phys.
- [ HEY 93 ] E.Heybrock  
Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1993
- [ HEY 96 ] E.Heybrock  
Dissertation, Universität Bielefeld 1996, ( 99 )
- [ HOO 78 ] S.T.Hood, A.J. Dixon, E. Weigold  
J.Phys.E: Sci. Instrum., Vol. 11, 1978, (948)

- [ HYDR ] \* W.Zernik  
Phys.Rev. A Vol. 51, 1964, (135)  
\* W.Zernik, R.W.Klopfenstein  
Journal of Mathematical Physics Vol. 6, 1965, (262)  
\* Y.Gontier, N.K.Rahman, M.Trahin  
Europhysics Letters, 1988,  
\* S.Basile, F.Trombetta, G.Ferrante  
Proceedings of "Atomic Spectra and Collisions in External  
Fields 2" Egham, Surrey, GB, July 30, 1987  
\* G.Kracke, H.Marxer, J.T.Broad, J.S.Briggs  
Zeitschrift für Physik D Vol. 8, 1988  
\* M.Trippenbach, K.Rzazewski, R.Grobe  
Phys.Rev. A Vol. 37, 1988, (4194)
- [ KAI 61 ] W.Kaiser, C.Garrett  
Phys.Rev.Lett. Vol. 7 , 1961, (229)
- [ KAR 90 ] E. Karule  
J.Opt.Soc.Am.B, Vol.7,1990, (631)
- [ KEL 65 ] L.V.Keldysh  
Soviet Physics JETP Vol. 20, 1965, (1307)
- [ KEL 85 ] D.E.Kelleher, M.Ligare, L.R.Brewer  
Phys.Rev. A Vol. 31, 1985, (2747)
- [ KONF ] \* J.Eberly, P.Lambropoulos  
*Multiphoton Processes*, 1978, New York : Wiley  
\* P.Lambropoulos, S.Smith  
*Multiphoton Processes*, 1984, Berlin : Springer  
\* S.Smith, P.Knight  
*Multiphoton Processes*, 1988, Cambridge : Cambridge University pr.  
\* G.Mainfray, P.Agostini  
*Multiphoton Processes*, 1991, Saclay
- [ KRU 81 ] Kruit et. Al.  
J. Phys. B Vol 14, 1981, (L 597)
- [ KRU 83 ] P.Kruit, J.Kimman, H.Muller, M.van der Weil  
Phys.Rev. A Vol. 28, 1983, (248)
- [ KUL 92 ] K.J.Schafer, K.C.Kulander  
Phys.Rev. A Vol. 45 No. 11, 1992, (8026)

- 
- [ KUP 88 ] J.Kupersztych,L.A.Lompre, G.Mainfray, C.Manus  
J. Phy. B: At. Mol. Opt. Phys. 21, 1988, (L517)
- [ LAM 76 ] P.Lambropoulos  
„*Advances in Atomic and Molecular Physics*“ Academic Press Vol. 12,  
D.R.Bates, B.Benderson, 1976, (87)
- [ LAM 96 ] U.Lambrecht  
priv. Mitteilung
- [ LEC 75 ] C.Lecompte, G.Mainfray, C.Manus, F.Sanchez  
Phys.Rev. A Vol. 11, 1975, (1009)
- [ LIN 88 ] H.B.vanLinden, van den Heuvell, H.G.Muller  
*Multiphoton Processes* edited by S.J.Smith and P.L.Knight  
Cambridge University Press 1988
- [ LUV 73 ] M.LuVan, G.Mainfray, C.Manus, I.Tugov  
Phys.Rev. A, Vol. 7, 1973, ( 91 )
- [ MAI 91 ] G.Mainfray, C.Manus  
Rep.Prog.Phys. 54, 1991, (1333)
- [ MAR 76 ] E.Martin, L.Mandel  
Appl.Opt. Vol. 15, 1976, (2378)
- [ MAU 92 ] P.Agostini, L.F.DiMauro  
Phys.Rev. A, Vol.47, No. 6, 1993, (47)
- [ MCI 86 ] T.J.McIlrath, P.H.Bucksbaum, R.R.Freeman, M.Bashkansky  
Phys.Rev. A Vol. 35 No. 11, 1987, (4611)
- [ MOR 91 ] D.H.Mordaunt, *Photofragment TOF Spectroscopy*,  
University of Bristol, Project CP.2 , 1991
- [ MUL 83 ] H.G.Muller, A.Tip, M.J.van der Weil  
J.Phys. B 16, 1983, (L679)
- [ MUL 86 ] H.G.Muller, H.B.van den Heuvell, M.J.van der Weil  
Phys.Rev. A, Vol. 34, 1986, (236)
- [ MUL 88 ] H.G.Muller, H.B.van Linden, van den Heuvel, P.Agostini, G.Petite,  
A.Antonetti, M.Franco, A.Migus Phys.Rev.Lett. Vol. 60, 1988, (565)

- [ MUL 90 ] H.G.Muller, P.H.Bucksbaum, D.M.Schumacher, A.Zavriyev  
J.Phys.B: At. Mol. Phys. Vol 23, 1990, (2761)
- [ MUL 92 ] M.P.deBoer H. G.Muller  
Phys.Rev.Lett. 68, 1992, (2747)
- [ MUL 93 ] M.P.deBoer, L.D.Noordam, H.G.Muller  
Phys.Rev. A, Vol.47, No. 1, 1993, (45)
- [ NOO 96 ] R.B.Vrijen, G.M.Lankhuijzen, D.J.Maas, L.D.Noordam  
Comments At. Mol.Phys. Vol.33, No 2, 1996, (77)
- [ OTT 85 ] G.Otto  
Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1985
- [ PAN 88 ] L.Pan, K.T.Taylor, C.W.Clark  
Phys. Rev. Lett. Vol 61, 23, 1988, (2673)
- [ PAN 89 ] L.Pan, C.W.Clark  
vgl. [MUL 90] personal communication
- [ PAR 86 ] J.Parker, C.R.Stroud  
Phys.Rev.Lett. Vol. 56, 1986, (716)
- [ PAU 96 ] G.G.Paulus,W.Nicklich,F.Zacher,P.Lambropoulos, H.Walter  
Journal Phys.B, 29, 1996, ( L249 )
- [ PET 85 ] D.Petring  
Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1985
- [ PLA 90 ] W.Plaß  
Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1990
- [ POT 89 ] R.M.Potvliege, R. Shakeshaft  
Phys. Rev. A Vol. 40, 1989, (3061)
- [ PRE 84 ] M. Preuß  
Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1984
- [ ROT ] H.Rottke,B.Wolff,M.Tapernon,D.Feldmann,K.H.Welge  
*„Resonant multiphoton ionisation of xenon and atomic hydrogen in  
intense sub ps laser pulses“* in Fundamentals of Laser Interactions II  
edited by F.Ehlotzky, Springer Verlag Berlin

- [ ROT 90 ] H.Rottke, B.Wolff, M.Brickwede, D.Feldmann, K.H.Welge  
Phys.Rev.Lett. Vol. 64, 1990, (404)
- [ ROT 92 ] H.Rottke, D.Feldmann, B.Wolff-Rottke, K.H.Welge  
J.Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. Vol.26, 1993, (L15)
- [ ROT 94 ] H. Rottke, D.Feldmann  
Phys. Rev. A Vol. 49, 1994, (4837)
- [ SAL 80 ] K.L.Sala, G.A.KennyWallace, G.E.Hall  
IEEE J.Quant.Electr. QE 16, No. 9, 1980, (880)
- [ SCH 90 ] K.J.Schafer, K.C.Kulander  
Phys.Rev.A, Vol.42, 1990, (5794)
- [ SCH 96 ] D.W.Schumacher, P.H.Bucksbaum  
Phys.Rev. A Vol. 54, No 5, 1996, (4271)
- [ SCU 90 ] P.H.Bucksbaum, L.D.VanWoerkom, R.R.Freeman, D.W.Schumacher  
Phys.Rev.A, Vol. 41, 1990, (4119)
- [ SCA 91 ] U. Schwagmeier  
Diplomarbeit, Universität Bielefeld 1991, (69), (57)
- [ SHA 90 ] R.Shakeshaft, R.M.Potvliege, M.Dörr  
Phys.Rev. A Vol. 41, 1990, (558)
- [ SMI 85 ] S.J.Smith, G.Leuchs  
*Advances in Atomic and Molecular Physics*, D.Bates B.Bederson  
New York Academic Press Vol. 24, 1987, (157)
- [ STE 84 ] H.Stein  
Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1984
- [ STA 82 ] A.F.Starace  
*Handbuch der Physik Bd XXXI*, W.Mehlhorn ed, Springer, 1982
- [ STI 95 ] H.J.Stiemke „Theoretische Untersuchungen zu Wasserstoff in  
starken Laserfeldern“ Dissertation, Universität Bielefeld, 1995
- [ TRA 89 ] B.Wolff  
private Mitteilung, Universität Bielefeld, 1989

- [ VER 89 ] J.W.J.Verschuur „Ionisation and Dissociation of NO and H<sub>2</sub> in strong Radiation Fields“ Dissertation Universität Amsterdam 1989 (76,78,111)
- [ VERÖF ]
- \* J.Bakos, 1974, Adv. Electron and Electron Phys. Vol. 36 (58ff)
  - \* P.Lambropoulos  
Adv.At.Mol.Phys. Vol. 12, 1976, (87)
  - \* J.Morellec  
Adv.At.Mol.Phys. Vol. 18, 1982, (97)
  - \* G.Mainfray  
J.Physique Vol. 43, 1982, (367)
  - \* S.Chu  
Adv.At.Mol.Phys. Vol. 21, 1985, (197)
  - \* C.K.Rhodes  
Science Vol. 299, 1985, (1345)
  - \* S.Smith, G.Leuchs  
Adv.At.Mo.Phys. Vol. 24, 1987, (157)
  - \* P.Lambropoulos  
Comment.At.Mol.Phys. Vol. 20, 1987, (199)
  - \* N.Delone, M.Federov  
Sov.Phys.Usp. Vol. 32, 1989a, (500)
  - \* R.Bruzzese, A.Sasso, S.Solimeno  
Riv.Nuovo Cimento Vol. 12, 1989, (1)
- [ VOL 35 ] D.M.Volkov  
Z.Phys. 94, 1935, (250)
- [ VOR 65 ] G.Voronov, N.Delone  
JETP Lett.Vol. 1, 1965, (66)
- [ WEL 93 ] H.Rottke, D.Feldmann, B.Wolff-Rottke, K.H.Welge  
J.Phys.B : At. Mol. Opt. Phys. 26, 1993, L15-L22
- [ WIE 78 ] S.T.Hood, A.J.Dixon, E.Weigold  
J.Phys.E: Sci.Instrum. Vol. 11, 1978, (948)
- [ WOE 96 ] P.Hansch, M.A.Walker, L.D.Van Woerkom  
Phys.Rev. A, Vol. 54, No. 4, 1996, (2559)
- [ WOL 88 ] B.Wolff, H.Rottke, D.Feldmann, K.H.Welge  
Z.Phys.D – Atoms, Molekules an Clusters, 10, 1988, (35)
- [ WOL 89 ] B.Wolff  
Dissertation, Universität Bielefeld, 1989



- [WRO 92 ] B.Wolff-Rottke, H.Rottke, K.H.Welge, D.Feldmann  
Phys.Rev. A, Vol. 46, 1992, (5594)
- [ WUR 91 ] H.Wurps  
Diplomarbeit Bielefeld 1991
- [ YAR 89 ] A.Yariv  
*Quantum Electronics* Wiley, New York 1989
- [ ZOL 79 ] P.Zoller  
Phys.Rev. A Vol. 9, 1979, (1151)

Diese Dissertation wurde an der Fakultät für Physik der Universität Bielefeld unter der Leitung von Herrn Priv. Doz. Dr. D. Feldmann angefertigt, dem ich für die Unterstützung des Projektes, seine Anregungen und Diskussionen in einer guten Atmosphäre danke.

Ferner gilt mein Dank Herrn Prof. Dr. F.H.M. Faisal für das Interesse und der theoretischen Unterstützung dieser Arbeit und den Mitgliedern seiner Arbeitsgruppe, namentlich Herrn Dr. A. Becker, Herrn Dr. U. Schwengelbeck und Herrn Dr. J. Muth-Böhm für die vielen interessanten und sehr hilfreichen Diskussionen. Insbesondere möchte ich mich für die Modellrechnungen von Frau Dr. U. Lambrecht bedanken, denen im letzten Kapitel dieser Arbeit eine nicht unerhebliche Bedeutung zukommen.

Danken möchte ich auch Herrn Priv. Doz. Dr. L. Schnieder, der mit kritischen Beiträgen die Präzisierung einiger Aspekte tatkräftig unterstützt hat. Weiter gilt mein Dank den Mitgliedern der gesamten Arbeitsgruppe der Etage D3 für die kollegiale Unterstützung.

Ich versichere, die vorliegende Dissertation selbständig und nur mit den zitierten Hilfsmitteln angefertigt zu haben.

## Lebenslauf

Name	Jürgen Gauer
Geburtsdatum	28.06.1953 in Bielefeld
Eltern	Ruth Gauer und Reinhold Gauer
Schulbildung	1960 – 1973 Abitur 1973
Grundwehrdienst	1973 – 1974
Studium	1974 – 1991 Physikstudium an der Universität Bielefeld Diplom im August 1991
wiss. Tätigkeit	1991 – 1993 wissenschaftlicher Mitarbeiter bei Prof. Dr. H. Zacharias an der GHS Essen  1993 – 2001 Mitarbeiter bei Priv. Doz. Dr. D. Feldmann an der Universität Bielefeld